



Élaboration et Caractérisation de Matériaux Ferromagnétiques Doux – Modélisation de Couches Magnétiques Inhomogènes

Vincent Dubuget

► To cite this version:

Vincent Dubuget. Élaboration et Caractérisation de Matériaux Ferromagnétiques Doux – Modélisation de Couches Magnétiques Inhomogènes. Matière Condensée [cond-mat]. Université François Rabelais - Tours, 2010. Français. NNT : . tel-00480050

HAL Id: tel-00480050

<https://theses.hal.science/tel-00480050>

Submitted on 3 May 2010

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



UNIVERSITÉ FRANÇOIS - RABELAIS DE TOURS



École Doctorale SST

THÈSE présentée par : **Vincent DUBUGET**

soutenue le : 5 février 2010

pour obtenir le grade de Docteur de l'Université François - Rabelais

Discipline : Physique, Sciences des Matériaux

Directeur de thèse : F. GERVAIS

**Élaboration et Caractérisation de Matériaux
Ferromagnétiques Doux
—
Modélisation de Couches Magnétiques Inhomogènes**

COMPOSITION DU JURY :

RAPPORTEURS :

BOBO Jean-François
VUKADINOVIC Nicolas

Directeur de Recherche, CNRS - LNMH, Toulouse
Ingénieur - HDR, Dassault Aviation, Saint-Cloud

EXAMINATEURS :

ADENOT-ENGELVIN Anne-Lise
GERVAIS François
THIAVILLE André
VÁZQUEZ Manuel

Ingénieur, CEA Le Ripault, Monts
Professeur, Université de Tours
Directeur de Recherche, CNRS - LPS, Paris Sud
Professeur, Université de Madrid

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du CEA Le Ripault, de la Direction des Applications Militaires, dans le Laboratoire des Matériaux Magnétiques et Optiques. Je remercie les responsables d'unité Monsieur C. Deleuze et Madame D. Rousselle de m'avoir accueilli dans leurs unités.

J'exprime ma profonde gratitude à Monsieur F. GERVAIS, Professeur et Directeur du Laboratoire d'Électrodynamique des Matériaux Avancés de l'Université François-Rabelais à Tours, qui a dirigé cette thèse en me donnant des conseils judicieux tout au long de ces trois années.

J'exprime ma sincère reconnaissance à Madame A-L. ADENOT-ENGELVIN, Ingénieur de Recherche au CEA Le Ripault, qui a encadré cette thèse et a guidé sa progression avec un esprit scientifique et critique remarquable.

Je tiens à remercier Messieurs J-F. BOBO, Directeur de Recherche au LNMH à Toulouse et N. VUKADINOVIC, Ingénieur à Dassault Aviation à S^t Cloud, qui m'ont fait l'honneur d'être les rapporteurs.

Je remercie également Messieurs A. THIAVILLE, Directeur de Recherche au LPS à Paris Sud et Conseiller Scientifique de notre laboratoire ainsi que M. VÁZQUEZ, Professeur au ICMM à Madrid d'avoir accepté de participer au jury.

Je souhaite remercier plus particulièrement F. Bertin pour son concours à l'élaboration et à la caractérisation des microfils et souligner le plaisir que j'ai eu à le côtoyer au jour le jour. Je remercie également O. Acher, S. Dubourg, F. Duverger, A. Thiaville, et P. Thibaudeau pour leurs nombreux conseils et leurs participations à mes travaux de thèse, ainsi que O. Bodin, M. Ledieu, J-H. Le Gallou, S. Piron et D. Plessis pour leurs contributions à l'élaboration et à la caractérisation des matériaux magnétiques.

Je remercie C. Ambard, J-C. Birolleau, S. Lambert et B. Minot du CEA Le Ripault pour les analyses physico-chimiques et microstructurales, B. Beuneu, G. André du LLB à Saclay pour leur accueil et leur assistance aux analyses microstructurales, F. Ott du LLB à Saclay avec qui nous avons mené des expériences de spectrométrie de précession, C. Autret et W. Saulquin du LEMA à Tours pour les caractérisations en RPE et en MFM.

Je remercie enfin chaleureusement tous les membres du Laboratoire des Matériaux Magnétiques et Optiques pour leur accueil, leurs conseils et leur aide.

Table des matières

Introduction	9
1 Introduction au ferromagnétisme	11
1.1 L'origine du magnétisme	12
1.2 Le ferromagnétisme et l'échange	13
1.3 Les énergies magnétiques	14
1.3.1 L'anisotropie magnétique	15
1.3.2 L'énergie de Zeeman	16
1.3.3 Le champ dipolaire	16
1.3.4 La magnétostriction	17
1.4 Le modèle de Stoner-Wohlfarth	18
1.5 Le gyromagnétisme	20
1.6 L'aimantation dynamiquement couplée	24
1.7 La structure en domaines magnétiques	26
I Caractérisation des propriétés magnétiques de matériaux doux	29
2 Influence de l'état structural : exemple des microfils nanocristallisés gainés de verre	31
2.1 Introduction	32
2.2 Élaboration des microfils gainés de verre par le procédé Taylor-Ulitovsky	32
2.2.1 Procédé de tirage Taylor-Ulitovsky	32

TABLE DES MATIÈRES

2.2.2	Production de microfils gainés de verre	34
2.3	Alliages métalliques magnétiques doux	35
2.3.1	Alliages amorphes	37
2.3.2	Alliages nanocristallisés	37
2.3.3	Élaboration des alliages métalliques précurseurs	38
2.4	Influence de l'état nanocristallisé sur les propriétés magnétiques des microfils à base fer	39
2.4.1	Détermination des températures de cristallisation	39
2.4.2	Effet de la nanocristallisation sur l'aimantation	41
2.4.3	Variation de l'anisotropie magnétique en fonction du traite- ment thermique	43
2.5	Comportement en température de l'aimantation et de l'anisotropie des microfils nanocristallisés	46
2.5.1	Dépendance en température de l'aimantation	48
2.5.2	Dépendance en température de l'anisotropie	51
2.5.3	Corrélation entre $M_s(T)$ et $K(T)$	56
2.6	Conclusion	58
3	Influence de la composition : exemple des couches minces ferroma- gnétiques amorphes en CoNb et CoZr	59
3.1	Élaboration par pulvérisation cathodique assistée magnétron	60
3.1.1	Pulvérisation cathodique	60
3.1.2	Matériaux magnétiques doux déposés par PVD	63
3.1.3	Faisabilité de dépôts avec un gradient de composition dans la largeur du film	66
3.2	Caractérisations structurales	70
3.2.1	Modèles structuraux pour les alliages amorphes	72
3.2.2	Analyses structurales de l'état amorphe	76
3.3	Influence de la composition sur les propriétés magnétiques	83
3.3.1	Propriétés magnétiques statiques	83
3.3.2	Propriétés magnétiques dynamiques	94

3.4	Réorientation de l'anisotropie magnétique	95
3.4.1	Traitement thermique sous champ	96
3.4.2	Traitement thermique sous contrainte	100
3.4.3	Modèles d'anisotropie magnétique induite : origine et réorien- tation	102
3.5	Conclusion	106
 II Modélisation de couches minces magnétiques inhomogènes		107
4	Prise en compte de la dispersion d'aimantation dans l'épaisseur	109
4.1	Origines liées au procédé d'élaboration	110
4.2	Dispersion d'anisotropie en angle	116
4.2.1	Cas d'une anisotropie uniaxe	116
4.2.2	Cas d'une distribution des axes d'anisotropie	117
4.2.3	Développement d'une mesure spire en rotation sous champ . .	119
4.2.4	Illustration de la dispersion d'aimantation en angle	119
4.3	Dispersion d'anisotropie en intensité	123
4.4	Application pour une monocouche déposée au déroulé sur un substrat polymère	124
4.4.1	Variation en angle de χ_i à H donné	125
4.4.2	Variation sous champ de χ_i à θ donné	126
4.5	Conclusion	130
5	Prise en compte de l'énergie d'échange	131
5.1	Intérêt de l'approche micromagnétique	132
5.2	Modèle micromagnétique <i>1D-Spiral</i>	134
5.2.1	Introduction de l'énergie d'échange	134
5.2.2	Les équations micromagnétiques	134
5.2.3	Résolution du modèle <i>1D-Spiral</i>	136
5.3	Élaboration spécifique de couches magnétiques inhomogènes	147

TABLE DES MATIÈRES

5.4	Étude d'une bicouche à anisotropies croisées	150
5.4.1	Application du modèle <i>1D-Spiral</i>	150
5.4.2	Aimantation dynamiquement couplée	158
5.4.3	Structure en domaines magnétiques	165
5.4.4	Spectrométrie de précession	170
5.5	Application du modèle <i>1D-Spiral</i> pour une multicouche	175
5.6	Discussion et Perspectives	178
Conclusion		181
Annexes		185
A Unités et constantes utiles		185
A.1	Conversions entre le système CGS et le Système International (SI) . .	185
A.2	Constantes physiques	186
B Techniques de caractérisation		187
B.1	Analyse de composition par spectrométrie d'émission atomique par plasma à couplage inductif (ICP-AES)	187
B.2	Mesure d'épaisseur d'une couche mince	187
B.2.1	Méthode par profilométrie	187
B.2.2	Méthode par pesée	188
B.3	Mesure du rayon de courbure	188
B.4	Mesure de la résistivité électrique	188
B.5	Caractérisation des propriétés magnétiques	189
B.5.1	En statique : magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) . . .	189
B.5.2	En dynamique : mesure par perturbation de spire	189
B.6	Imagerie des domaines magnétiques par effet Kerr	192
C Publications et communications		195

Introduction

L'évolution des technologies telles que la téléphonie mobile et l'enregistrement magnétique requiert de développer de nouveaux matériaux dans le but d'accroître les fréquences de fonctionnement, de miniaturiser les dispositifs et de proposer une agilité en fréquence. En particulier, des matériaux magnétiques doux sont requis pour répondre à ces besoins. Le panel des propriétés accessibles dépend en grande partie de l'anisotropie magnétique, laquelle est fonction de l'état structural, de la composition et du procédé d'élaboration.

Les matériaux magnétiques métalliques possèdent d'excellentes propriétés pour des applications hyperfréquences dans la gamme de fréquence du MHz au GHz. Néanmoins, en raison de leur caractère conducteur, il est requis qu'une ou plusieurs dimensions du matériau soient inférieures à la longueur de pénétration de l'onde électromagnétique excitatrice ($\delta_p \approx 1 \mu\text{m}$). Or, certains dispositifs hyperfréquences tels que les inductances planaires et les filtres en fréquence nécessitent une grande perméance, produit de la perméabilité par l'épaisseur. De la contradiction entre une épaisseur maximale et une épaisseur limitée par la non-pénétration de l'onde ont été développés des composites constitués d'un matériau ferromagnétique et d'un isolant non-magnétique. C'est pourquoi, les microfils gainés de verre ($\phi \approx 8 \mu\text{m}$) élaborés par le procédé Taylor-Ulitovsky et les couches minces magnétiques amorphes ($t \approx 1 \mu\text{m}$) déposées sur substrat polymère par pulvérisation cathodique assistée magnétron sont étudiés au laboratoire.

Lorsque l'épaisseur des couches magnétiques est inférieure à quelques dizaines de nm, le comportement magnétique en statique et en dynamique est modélisé dans l'approximation du *macrospin*, laquelle suppose une aimantation uniforme. En réalité, la réponse magnétique des films doux d'épaisseur micronique est particulièrement sensible à la distribution d'anisotropie en angle et/ou en intensité, générée par le procédé d'élaboration. Ainsi, la modélisation du comportement magnétique requiert de formuler de nouvelles approximations définies selon les critères suivants :

- le degré de dispersion d'anisotropie par rapport au champ d'anisotropie.
- le rapport entre l'épaisseur de la couche et la longueur de la paroi magnétique, ainsi qu'*a fortiori* de la longueur d'échange.

Ces critères conditionnent soit la possibilité de décomposer la réponse du matériau en la résultante de *n-macrospins* soit la nécessité de prendre en compte *l'énergie d'échange*.

Mes travaux de thèse portent sur la caractérisation et la modélisation des propriétés magnétiques de matériaux doux, avec une attention particulière au sujet de l'anisotropie magnétique : son intensité, sa distribution en angle et/ou en intensité, son comportement en température. Notamment, la distribution d'anisotropie engendre une dispersion d'aimantation, qui a une incidence sur les propriétés magnétiques statiques et dynamiques.

Au cours du **Chapitre I** sont rappelées les notions du magnétisme utiles et utilisées tout au long de ce mémoire. Ainsi les énergies magnétiques et les modèles d'aimantation statique et dynamique sont notamment définis.

Une **première partie** est consacrée à l'élaboration de matériaux magnétiques doux et à la caractérisation de leurs propriétés magnétiques. Dans le **Chapitre II** est présentée l'influence de l'état structural sur les propriétés magnétiques statiques au travers des microfils gainés de verre de composition Finemet. La formation d'une phase nanocristallisée après un traitement thermique conditionne l'obtention des propriétés magnétiques douces. Une attention particulière est portée sur la dépendance en température de l'aimantation à saturation et de l'anisotropie magnétique. Dans le **Chapitre III** est reportée l'influence de la composition sur les propriétés structurales et magnétiques des couches minces magnétiques amorphes. Malgré les nombreux travaux relatifs aux alliages CoNb et CoZr, cette étude reste pertinente en raison de l'extrême sensibilité de certaines propriétés en fonction du procédé et des conditions d'élaboration. En particulier, l'aptitude de réorientation de l'axe de facile aimantation suite à un traitement thermique sous champ ou sous contrainte est étudiée, laissant transparaître une dispersion d'anisotropie modélisée par un *double macrospin*.

Une **deuxième partie** est dédiée à la modélisation des couches minces magnétiques douces présentant une aimantation inhomogène dans l'épaisseur. Dans le **Chapitre IV** est notamment étudiée la dispersion d'aimantation liée au procédé d'élaboration des couches magnétiques douces *d'épaisseur micronique*. Différentes méthodes sont proposées afin d'estimer la distribution en angle et en intensité de l'anisotropie. Pour ce faire, la réponse magnétique d'une monocouche micronique est supposée équivalente à la réponse résultante de *n-macrospins* non-couplés par l'échange. Diverses illustrations de la prise en compte de la distribution d'anisotropie lors du calcul de la susceptibilité initiale sous champ et/ou en angle sont présentées. Dans le **Chapitre V**, *l'énergie d'échange* est introduite par le biais d'un modèle micromagnétique unidimensionnel intitulé *1D-Spiral*. Des bicouches à anisotropies magnétiques croisées ont été spécifiquement élaborées afin d'imposer une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur connue. En particulier, une bicouche a servi de cas d'école pour valider le modèle micromagnétique et pour appliquer l'aimantation dynamiquement couplée à un matériau magnétique inhomogène. Afin de réduire l'anisotropie magnétique, une multicouche à anisotropies croisées a été élaborée et modélisée avec le modèle *1D-Spiral*.

Chapitre 1

Introduction au ferromagnétisme

Sommaire

1.1	L'origine du magnétisme	12
1.2	Le ferromagnétisme et l'échange	13
1.3	Les énergies magnétiques	14
1.4	Le modèle de Stoner-Wohlfarth	18
1.5	Le gyromagnétisme	20
1.6	L'aimantation dynamiquement couplée	24
1.7	La structure en domaines magnétiques	26

1.1 L'origine du magnétisme

Le moment magnétique atomique est la résultante d'une contribution électronique (10^{-23} A.m²) et d'une contribution nucléaire beaucoup plus faible (5×10^{-27} A.m²). Le moment magnétique électronique est lui-même composé d'un moment magnétique orbital μ_l , associé au mouvement de l'électron sur son orbite autour du noyau et d'un moment magnétique de spin μ_s , lié au moment cinétique de spin \vec{s} de l'électron. Il est intéressant d'introduire une notion importante par la suite : **le couplage spin-orbite**. Ce couplage résulte de l'interaction entre les moments cinétiques de spin \vec{s} et d'orbite \vec{l} et par conséquent, entre les moments magnétiques associés. L'énergie de cette interaction est proportionnelle au produit scalaire $\vec{l} \cdot \vec{s}$:

$$E_{\vec{l}, \vec{s}} = \lambda \vec{l} \cdot \vec{s},$$

avec $\lambda = \frac{2\mu_B \hbar dV}{m r dr}$ dans le cas où un seul électron est considéré. Le couplage spin-orbite influe sur le moment magnétique de certains éléments tels que les terres rares et est à l'origine de l'anisotropie magnétique dans les matériaux magnétiques amorphes. Lorsqu'un atome comporte plusieurs électrons, son moment magnétique \vec{M} est associé au moment cinétique total \vec{J} , qui est la somme du moment magnétique orbital $-g_L \mu_B \vec{L}$ et du moment magnétique de spin $-g_S \mu_B \vec{S}$:

$$\vec{M} = -g \mu_B \vec{J}$$

où le facteur de Landé g s'exprime en fonction des nombres quantiques principaux (S, L, J). Du facteur de Landé dépendra la valeur de l'aimantation à saturation du matériau ($M_s = g' \mu_B V/N$) et le rapport gyromagnétique ($\gamma = g \mu_B / \hbar$) [1].

Le magnétisme spontané des éléments de transition [3d] (Fe, Co, Ni) résulte de l'existence de sous-couches électroniques incomplètes et par conséquent, les valeurs de \vec{L} et de \vec{S} associées sont non nulles. Les métaux amorphes riches en élément de transition [3d] sont représentés sous forme d'un arrangement d'ions positifs plongés dans un nuage d'électrons de conduction. Les ions au voisinage des autres ions créent un champ électrique cristallin E_c . Ce champ électrique a pour effet de bloquer le moment cinétique orbital sans pour autant modifier la valeur du moment cinétique de spin de l'électron. Ainsi la seule contribution au moment magnétique total est le moment magnétique de spin avec $E_c \gg E_{\vec{l}, \vec{s}}$. Le moment magnétique du cobalt

massif vaut $1.85 \mu_B$ [2]. En conclusion, le magnétisme des éléments (Fe, Co, Ni) est décrit à partir d'un modèle d'électrons itinérants, au contraire du modèle des électrons localisés pour les terres rares ($E_c \ll E_{\vec{L},\vec{S}}$).

1.2 Le ferromagnétisme et l'échange

Comme il existe un couplage spin-orbite, il existe également un couplage spin-spin nommé interaction d'échange d'Heisenberg. Le couplage entre les spins de deux électrons appartenant à des atomes voisins (i et j) possède une énergie de la forme $-J_{ex}(\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)$. Cette énergie résulte des interactions interélectroniques de Coulomb et du principe d'exclusion de Pauli des spins \vec{S}_i et \vec{S}_j . Le signe de l'intégrale d'échange J_{ex} (en J) définit l'orientation des spins \vec{S}_i et \vec{S}_j :

- **ordre antiferromagnétique** pour $J_{ex} < 0$: les spins sont orientés dans des directions opposées.
- **ordre ferromagnétique** pour $J_{ex} > 0$: les spins sont orientés dans la même direction.

Le lien entre l'intégrale d'échange J_{ex} et la constante d'échange de Landau A (en J/m) s'écrit :

$$A = \frac{\mu_0 M_s^2}{2} \left(\frac{2J_{ex}S(S+1)}{\mu_0 M_s^2} \right)^{2/3}. \quad (1.1)$$

L'intégrale d'échange du cobalt pur vaut $J_{ex} = 4.5 \times 10^{-21}$ J. La valeur du spin S pour le cobalt et les alliages à base de cobalt vaut $5/2$ [3]. Le couplage d'échange est une interaction à courte portée car la valeur de la constante d'échange dépend du recouvrement des orbitales atomiques. La portée sur laquelle cette énergie couple les moments magnétiques voisins est définie par la longueur d'échange : $\delta_{ex} = \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2}$, soit ≈ 5 nm pour les couches minces amorphes à base cobalt.

Dans l'approximation du champ moléculaire, chaque moment magnétique est soumis à un champ proportionnel à l'aimantation moyenne créée par ses voisins. La somme des moments magnétiques orientés les uns par rapport aux autres constitue une aimantation spontanée $M_s(T)$. En accord avec la Figure 1.1, l'aimantation est maximale à température nulle, décroît avec la température et s'annule à la température de Curie (T_c). La transition d'un ordre ferromagnétique vers un état para-

1.3. LES ÉNERGIES MAGNÉTIQUES

magnétique ($M_s = 0$) résulte de la compétition entre l'énergie d'échange (qui tend à aligner les moments magnétiques) et l'agitation thermique ($k_B T$).

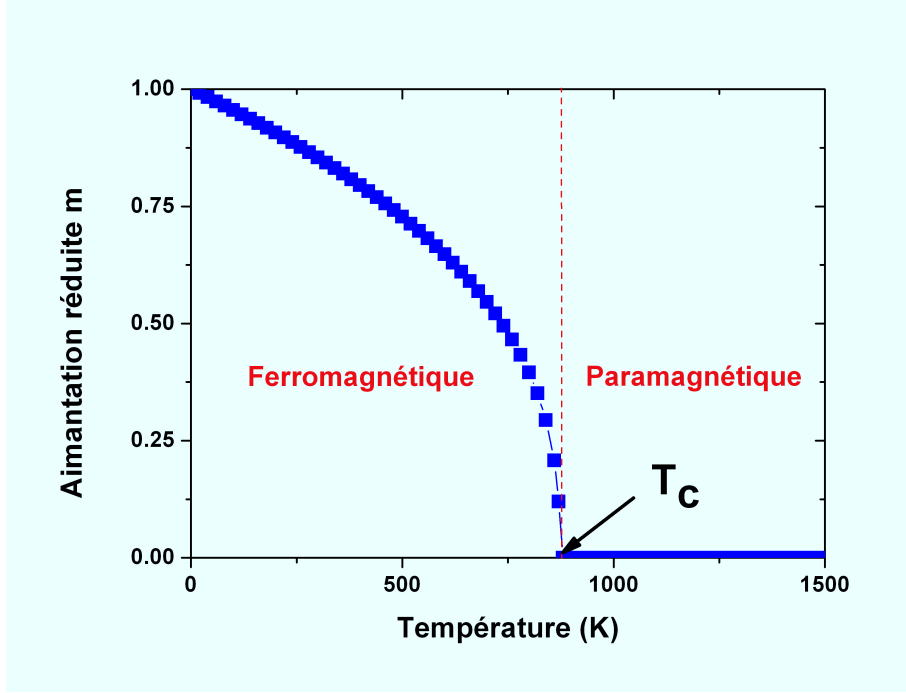


FIGURE 1.1 – Transition de l'ordre ferromagnétique à l'ordre paramagnétique pour une température égale à la température de Curie.

1.3 Les énergies magnétiques

Considérons un matériau ferromagnétique d'aimantation \vec{M} confinée dans le volume fini Ω_0 , l'induction magnétique s'écrit $\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M})$. À l'extérieur de Ω_0 , l'aimantation est quasi-nulle¹ : $\vec{B} = \mu_0\vec{H}$. Un champ est associé à chaque densité d'énergie magnétique :

$$\vec{H} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\delta G}{\delta \vec{M}}, \quad (1.2)$$

où $\frac{\delta G}{\delta \vec{M}}$ est la dérivée fonctionnelle de la densité d'énergie en fonction de \vec{M} .

1. Pour les couches minces d'anisotropie uniaxe planaire, les champs magnétiques dus au champ dipolaire sont négligeables puisque l'aimantation est confinée dans le plan de la couche.

1.3.1 L'anisotropie magnétique

L'énergie d'anisotropie magnétique volumique définit les axes de facile aimantation selon lesquels l'aimantation tend à s'aligner afin de minimiser son énergie. Dans un matériau cristallin, les axes de facile aimantation se confondent avec les axes cristallins du matériau. Par exemple, l'axe de facile aimantation correspond à l'axe \vec{c} pour le cobalt de structure cristalline hexagonale compacte (h.c.p.). L'anisotropie magnéto-cristalline résulte de l'interaction entre les moments magnétiques et le champ cristallin via les orbitales électroniques. Dans le cas des éléments de transition (Fe, Co, Ni), cette interaction est plus complexe. Dès lors, plusieurs types d'anisotropie se distinguent selon la nature cristalline du matériau : l'anisotropie uniaxe, cubique ou bien orthorhombique. Leurs expressions exhaustives sont reportées dans l'ouvrage d'Hubert [4]. On différencie également l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline d'origine surfacique de celle d'origine volumique. Au vu des épaisseurs considérées², seule la densité d'énergie volumique est retenue :

$$G_K = K \left(1 - \frac{(\vec{n} \cdot \vec{M})^2}{M_s^2} \right) + \dots \quad (1.3)$$

où \vec{n} est la direction de l'axe de facile aimantation et K la 1^{ère} constante d'anisotropie du matériau exprimée en J/m³. Tout axe situé dans un plan perpendiculaire à l'axe de facile aimantation correspond à un axe de difficile aimantation. Le champ d'anisotropie associé s'écrit :

$$\vec{H}_K = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\delta G_K}{\delta \vec{M}} = \frac{2K}{\mu_0 M_s^2} (\vec{n} \cdot \vec{M}) \vec{n} \quad (1.4)$$

La constante d'anisotropie K vaut 4.5×10^5 J/m³ pour le cobalt de structure cristalline h.c.p. et environ 1×10^3 J/m³ pour les alliages amorphes à base cobalt.

2. Cette approximation est raisonnable pour des couches minces d'épaisseur micrométrique mais ne l'est plus pour des films composés de quelques plans atomiques.

1.3.2 L'énergie de Zeeman

L'énergie de Zeeman correspond à l'interaction entre le vecteur aimantation \vec{M} et le champ magnétique statique appliqué \vec{H}_0 .

$$G_z = -\mu_0 \cdot (\vec{H}_0 \cdot \vec{M}) \quad (1.5)$$

1.3.3 Le champ dipolaire

L'énergie du champ dipolaire désigne l'énergie induite par le corps magnétique en raison de l'existence d'une aimantation permanente. Elle est à distinguer de l'énergie de Zeeman qui dépend uniquement du champ magnétique extérieur. Pour cette raison, elle est communément appelée énergie magnétostatique et se conforme à l'équation de Maxwell :

$$\text{div} \left(\vec{B} \right) = \text{div} \left(\mu_0 \left(\vec{H}_d + \vec{M} \right) \right) = 0$$

Par analogie avec les charges électriques ponctuelles, on définit des charges magnétiques fictives (positives ou négatives) qui seraient à l'origine du champ dipolaire. Mais rappelons que contrairement aux charges électriques, les charges magnétiques ne peuvent être isolées puisqu'il n'existe pas de monopole magnétique. On en déduit ainsi :

$$\text{div} \left(\vec{H}_d \right) = -\text{div} \left(\vec{M} \right)$$

avec $\vec{H}_d = -\vec{\bar{N}}\vec{M}$. On introduit le tenseur du champ démagnétisant $\vec{\bar{N}}$ comme la proportion entre \vec{M} et \vec{H}_d . Dès lors, l'induction magnétique totale dans un matériau ferromagnétique s'exprime sous la forme $\vec{B} = \mu_0(\vec{H} - \vec{\bar{N}}\vec{M} + \vec{M})$. L'énergie du champ dipolaire s'écrit :

$$G_d = -\frac{\mu_0}{2} \vec{M} \cdot \vec{H}_d. \quad (1.6)$$

Par convention, cette énergie est définie positive étant donné que le champ dipolaire statique s'oppose systématiquement au vecteur aimantation : $\vec{H}_d = -\vec{\bar{N}}\vec{M}$. Osborn a déterminé le tenseur du champ dipolaire exact dans le cas d'une sphère ou d'une ellipse **uniformément aimantées** [5]. Le champ dipolaire d'une couche mince a été calculé analytiquement à partir de la théorie du potentiel par Aharoni [6]. Pour ce

1.3. LES ÉNERGIES MAGNÉTIQUES

faire, un matériau ferromagnétique homogène de forme rectangulaire est considéré avec une largeur a , une longueur b et une épaisseur c . Lorsque les axes du repère de l'échantillon coïncident avec les axes propres de l'aimantation et que $a \rightarrow \infty$, $b \rightarrow \infty$ et $c \ll 1$, les composantes du tenseur démagnétisant s'écrivent :

$$N_x = N_y \approx 1 + \frac{p}{\pi} \left(\frac{1}{2} + \ln(p) \right), \quad (1.7)$$

$$N_x + N_y + N_z = 1, \quad (1.8)$$

avec $p = c/b$ le rapport de l'épaisseur sur la longueur de l'échantillon. À titre de comparaison, la formule d'Osborn donne $N_x = 1.74 \times 10^{-4}$ et la formule d'Aharoni $N_x = 1.77 \times 10^{-4}$ pour une couche mince de dimension $9 \times 9 \text{ mm}^2$ et d'épaisseur $1 \text{ }\mu\text{m}$. En conclusion, les valeurs des composantes $N_x = N_y$ données par Osborn et par Aharoni ne diffèrent que très légèrement dans le cas d'une couche uniformément aimantée. Pour une couche mince d'aimantation dans le plan, les composantes du tenseur sont communément approximées : $N_x = N_y \ll 1$ et $N_z \approx 1$.

1.3.4 La magnétostriction

L'interaction magnéto-élastique rend compte de la déformation d'un matériau ferromagnétique sous l'effet d'un champ magnétique appliqué. En général, la déformation relative du matériau est maximale (0.1 à 0.2 %) lorsque l'échantillon est saturé. Réciproquement, l'application d'une contrainte σ suivant une direction d'angle Θ avec l'axe de facile aimantation modifie la direction de l'aimantation. L'énergie magnéto-élastique s'écrit :

$$G_\sigma = -\frac{3}{2} \lambda_s \sigma \cos^2(\Theta) \quad (1.9)$$

avec λ_s le coefficient de magnétostriction à saturation. Tout mécanisme physique visant à changer la distance interatomique pour un matériau ferromagnétique conduit à la magnétostriction.

1.4 Le modèle de Stoner-Wohlfarth

Stoner et Wohlfarth ont proposé un modèle de rotation cohérente des moments magnétiques dans l'approximation du macrospin pour reproduire les courbes d'aimantation [7]. Le modèle de Stoner-Wohlfarth (S-W) est une approche énergétique de minimisation de l'énergie libre du système, en recherchant l'angle de facile aimantation θ . Pour cela, considérons une couche mince magnétique d'anisotropie uniaxe planaire avec $N_z = 1$ et un champ statique appliqué dans le plan de la couche. La densité d'énergie magnétique totale s'écrit en statique³ :

$$G_t = G_K + G_z + G_d \quad (1.10)$$

$$\begin{aligned} G_t = & -K [\sin(\varphi) \cos(\theta) \cos(\theta_K) + \sin(\varphi) \sin(\theta) \sin(\theta_K)]^2 \\ & - \mu_0 M_s H_0 [\sin(\varphi) \cos(\theta) \cos(\theta_H) + \sin(\varphi) \sin(\theta) \sin(\theta_H)] \\ & + \left(-K_p + \frac{\mu_0}{2} M_s^2\right) \cos^2(\varphi) \end{aligned} \quad (1.11)$$

avec K la densité d'anisotropie dans le plan et K_p une anisotropie hors plan. La Figure 1.2 représente les différents angles mentionnés dans l'équation (1.11).

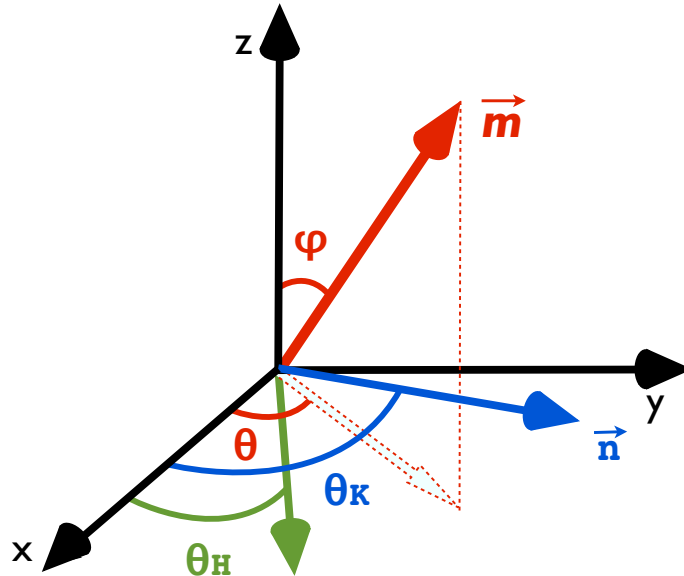


FIGURE 1.2 – Définition du système de coordonnées.

3. L'énergie magnétostrictive n'est pas explicitement exprimée. Elle peut-être intégrée dans la valeur de la constante d'anisotropie qui sera dès lors considérée comme une anisotropie effective.

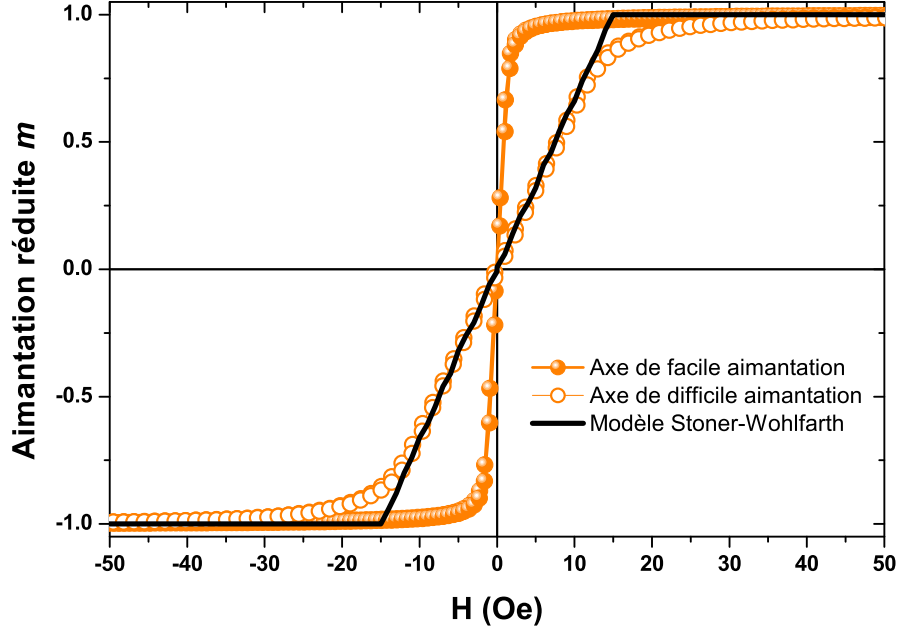


FIGURE 1.3 – Cycles d’hystérésis selon l’axe de facile et difficile aimantation d’une couche mince amorphe à base cobalt. En trait noir est représentée la courbe d’aimantation simulée avec le modèle de Stoner-Wohlfarth.

Dans le cas d’une couche mince magnétique d’anisotropie uniaxe planaire ($K_p = 0$) et d’une aimantation dans le plan de la couche, l’énergie magnétique totale se simplifie et s’écrit :

$$G_t = -K \cos^2(\theta - \theta_K) - \mu_0 M_s H_0 \cos(\theta - \theta_H)$$

Dans le but de déterminer l’angle d’aimantation θ , G_t est minimisée en satisfaisant la condition d’équilibre :

$$\frac{\partial G_t}{\partial \theta} = +2K \sin(2\theta - 2\theta_K) + \mu_0 M_s H_0 \sin(\theta - \theta_H) = 0, \quad (1.12)$$

et de stabilité :

$$\frac{\partial^2 G_t}{\partial \theta^2} = +2K \cos(2\theta - 2\theta_K) + \mu_0 M_s H_0 \cos(\theta - \theta_H) > 0. \quad (1.13)$$

Le cycle d'hystérésis correspond à la réponse de l'aimantation sous un champ magnétique statique ($+H_0$) de manière à saturer l'échantillon dans une direction, puis d'inverser le champ ($-H_0$) pour saturer le matériau dans la direction opposée. La courbe d'aimantation présente une hystérèse à laquelle sont associés un champ coercitif et une aimantation rémanente (cf Figure 1.3). La courbe d'aimantation simulée s'obtient en résolvant le système pour différentes valeurs de champ statique. Pour les matériaux magnétiques doux, ce modèle mime uniquement la courbe de difficile aimantation (cf Figure 1.3).

1.5 Le gyromagnétisme

La perméabilité hyperfréquence correspond à la réponse de l'aimantation à un champ dynamique alternatif de fréquence f et uniforme. Lorsque l'aimantation statique est parallèle au champ dynamique h , la perméabilité μ est égale à 1 et la susceptibilité est nulle ($\mu = \chi + 1$). Pour une excitation dynamique transverse, l'aimantation dynamique va suivre un mouvement de précession autour de l'aimantation statique, pour lequel se produit un phénomène de résonance à une fréquence donnée. Il en résulte un spectre de perméabilité hyperfréquence où μ' est la perméabilité réelle et μ'' est la perméabilité imaginaire en raison du déphasage de l'aimantation dynamique par rapport au champ exciteur. La perméabilité hyperfréquence se déduit de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) qui décrit la précession de l'aimantation dynamique autour d'un champ effectif. L'équation de LLG se compose d'une équation de mouvement secondée par un terme d'amortissement pour retranscrire les pertes :

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = \underbrace{-\gamma \vec{M} \times \vec{B}}_{\text{précession}} + \underbrace{\frac{\alpha}{\|\vec{M}\|} \vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t}}_{\text{amortissement}} \quad (1.14)$$

Le terme de précession est l'équation du gyroscope et le terme d'amortissement traduit les pertes. $\gamma = ge/(2m_e)$ correspond au facteur gyromagnétique. α est un paramètre adimensionné⁴ introduit par Gilbert pour tenir compte de la dissipation

4. Dans ce formalisme, l'amortissement α est supposé isotrope et constant spectralement. Néanmoins, de récents travaux ont formulé α sous forme d'un tenseur anisotrope [8].

1.5. LE GYROMAGNÉTISME

d'énergie lors de l'amortissement. Il est d'usage de définir :

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\bar{\gamma} \vec{M} \times (\vec{H}_\Sigma + \vec{h}) + \frac{\alpha}{\|\vec{M}\|} \vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} \quad (1.15)$$

avec $\bar{\gamma} = \gamma \mu_0$ et un champ effectif⁵ $\vec{H}_\Sigma = \vec{H}_K + \vec{H}_z + \vec{H}_d$. En dynamique, nous définissons $\vec{M} = \vec{M}_0 + \vec{m}$ avec $\|\vec{m}\| \ll \|\vec{M}_0\| = M_s$ et $\vec{H} = \vec{H}_0 + \vec{h}$, de manière à écrire :

$$\frac{d\vec{m}}{dt} = -\bar{\gamma} \left[\vec{M}_0 \times \vec{h} + \vec{m} \times \vec{H}_\Sigma + \vec{m} \times \vec{h} \right] + \alpha \left[\frac{\vec{M}_0}{M_s} \times \frac{d\vec{m}}{dt} + \frac{\vec{m}}{M_s} \times \frac{d\vec{m}}{dt} \right]$$

Maintenant, linéarisons l'équation de LLG en considérant :

$$\begin{cases} \vec{m} \times \frac{d\vec{m}}{dt} = \vec{0} \\ \vec{m} \times \vec{h} = \vec{0} \end{cases} \quad (1.16)$$

de manière à obtenir la relation de LLG linéarisée :

$$\frac{d\vec{m}}{dt} = -\bar{\gamma} \vec{M}_0 \times \vec{h} - \bar{\gamma} \vec{m} \times \vec{H}_\Sigma + \alpha \frac{\vec{M}_0}{M_s} \times \frac{d\vec{m}}{dt}. \quad (1.17)$$

Les solutions de l'équation LLG s'expriment sous forme harmonique avec $\vec{m} = \vec{m}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}$ et une excitation extérieure $\vec{h} = \vec{h}_0 e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)}$. Dès lors, on exprime le tenseur de susceptibilité magnétique dynamique $\bar{\chi}$ de dimension 3×3 comme la proportion entre \vec{m} et \vec{h} : $\vec{m} = \bar{\chi} \vec{h}$.

Dans le cas d'un matériau magnétique homogène, la résolution de l'équation LLG nécessite de déterminer le champ effectif \vec{H}_Σ à partir des équations (1.2) et (1.11). À titre d'exemple, les expressions simplifiées de la perméabilité réelle μ' et imaginaire μ'' sont présentées pour une aimantation uniforme alignée selon x et excitée par un

5. Le champ effectif exprimé est réduit puisqu'en réalité, \vec{H}_Σ se compose également du champ de magnétostriction et du champ d'échange.

1.5. LE GYROMAGNÉTISME

champ dynamique transverse \vec{h}_y de pulsation $\omega = 2\pi f$ [9] :

$$\begin{aligned}\mu' &= 1 + M_s \bar{\gamma}^2 \frac{(H_K + H_z + M_s)(\omega_r^2 - \omega) + \alpha^2 \omega^2 (H_K + H_z)}{(\omega_r^2 - (1 + \alpha^2)\omega^2)^2 + \alpha^2 \omega^2 \gamma^2 (2H_K + 2H_z + M_s)^2} \\ \mu'' &= M_s \bar{\gamma} \alpha \omega \frac{(1 + \alpha^2)\omega^2 + \gamma^2 (H_K + H_z + M_s)^2}{(\omega_r^2 - (1 + \alpha^2)\omega^2)^2 + \alpha^2 \omega^2 \gamma^2 (2H_K + 2H_z + M_s)^2}\end{aligned}$$

La fréquence de résonance s'écrit :

$$f_r = \tilde{\gamma} \sqrt{(H_K + H_z + M_s)(H_K + H_z)} \approx \tilde{\gamma} \sqrt{M_s(H_K + H_z)} \quad (1.18)$$

avec $\tilde{\gamma} = \gamma \mu_0 / (2\pi)$. Le facteur g vaut 2 pour l'électron libre et 2.18 pour le cobalt pur ($\tilde{\gamma} = 0.038$ MHz.m/A). C'est pourquoi, la fréquence de résonance d'un matériau magnétique dépend directement de la valeur de g . En régime statique où f est nulle, la perméabilité magnétique relative μ_r est définie par :

$$\mu_r = \mu'_{(0)} = 1 + \frac{M_s}{H_K + H_z} \quad \text{et} \quad \mu''_{(0)} = 0.$$

La valeur de la densité d'énergie d'anisotropie est estimée à partir de la fréquence de résonance déduite du spectre de susceptibilité :

$$K = \mu_0 f_r^2 / (2\tilde{\gamma}^2) \quad (1.19)$$

Lorsque la direction de facile aimantation est le long de l'axe x et que les champs statique et dynamique sont appliqués selon les axes x ou y uniquement, il est possible de calculer analytiquement les expressions de la fréquence de résonance, de la perméabilité initiale et du maximum de la perméabilité imaginaire. Ces expressions sont reportées dans la Table 1.1 pour les différentes configurations de mesure [9].

La Figure 1.4 montre le spectre de perméabilité d'une couche mince magnétique d'anisotropie uniaxe dans le plan dont le spectre hyperfréquence se caractérise par :

- la perméabilité initiale μ'_i .
- le maximum de la perméabilité imaginaire μ''_{max} .
- la fréquence de résonance f_r pour $\mu' = 1$ ou pour μ'' maximale.
- l'élargissement spectral lié aux pertes par absorption.

1.5. LE GYROMAGNÉTISME

La modélisation d'un spectre hyperfréquence en utilisant le modèle gyromagnétique est représentée sur la Figure 1.4. Ainsi l'affinement du spectre hyperfréquence avec ce modèle permet d'estimer l'aimantation à saturation du matériau, le champ d'anisotropie et le coefficient d'amortissement α .

Configuration	(h_y, H_x)	(h_x, H_y)		(h_y, H_y)
Champ	$H_0 > 0$	$H_K > H_0 > 0$	$H_0 > H_K$	$H_K > H_0 > 0$
Fréquence de résonance	$\approx \tilde{\gamma} \sqrt{M_s(H_K + H_0)}$	$\approx \tilde{\gamma} \sqrt{M_s \left(H_K - \frac{H_0^2}{H_K} \right)}$	$\approx \tilde{\gamma} \sqrt{M_s(H_0 - H_K)}$	$\approx \tilde{\gamma} \sqrt{M_s \left(H_K - \frac{H_0^2}{H_K} \right)}$
$\mu'_i (f = 0)$	$1 + \frac{M_s}{H_0 + H_K}$	$1 + \frac{M_s H_0^2}{H_K (H_K^2 - H_0^2)}$	$1 + \frac{M_s}{H_0 - H_K}$	$1 + \frac{M_s}{H_K}$
μ''_{max}	$\approx \frac{1}{\alpha} \sqrt{\frac{M_s}{H_0 + H_K}}$	$\approx \frac{1}{\alpha} \frac{H_K^2}{H_0^2} \sqrt{\frac{M_s}{H_K - \frac{H_0^2}{H_K}}}$	$\approx \frac{1}{\alpha} \sqrt{\frac{M_s}{H_0 - H_K}}$	$\approx \frac{1}{\alpha} \sqrt{\frac{M_s (H_K^2 - H_0^2)}{H_K^3}}$

TABLE 1.1 – **Expressions de la fréquence de résonance et de la perméabilité pour différentes configurations de champs statique et dynamique.** L'axe de facile aimantation est selon x .

Pour les matériaux métalliques, l'excitation par un champ alternatif extérieur crée des courants de Foucault qui écrantent partiellement ou totalement le phénomène de résonance. Ces courants produisent un champ magnétique intense au centre de l'échantillon et nul en surface, qui s'oppose au champ appliqué. Il en résulte une non pénétration de l'onde électromagnétique au-delà d'une longueur caractéristique appelée épaisseur de peau. Loin de la résonance, l'épaisseur de peau est définie par :

$$\delta_p = \sqrt{\frac{2}{\sigma \mu_0 \mu' \omega}} \quad (1.20)$$

où $\sigma = 1/\rho$ est la conductivité électrique du matériau. Ce phénomène est nommé effet de peau. C'est pourquoi, l'épaisseur des matériaux employés dans le domaine des hyperfréquences doit être inférieure à l'épaisseur de peau.

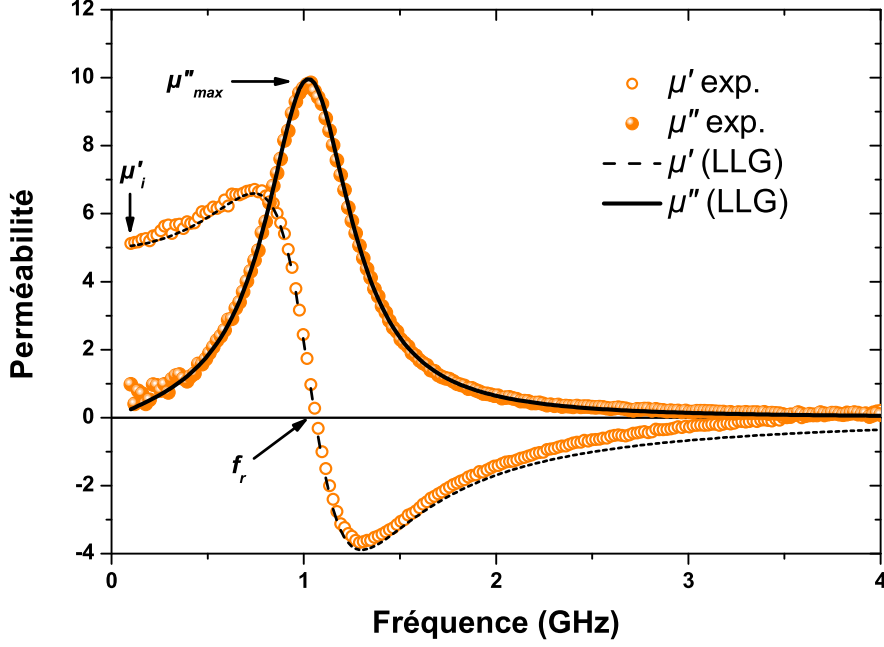


FIGURE 1.4 – Perméabilité hyperfréquence d’une couche mince magnétique d’anisotropie uniaxe planaire. La modélisation du spectre de perméabilité est réalisée à partir de l’équation LLG.

1.6 L’aimantation dynamiquement couplée

Lorsque le matériau magnétique est **homogène**, la loi de Snoek [10] qui est dérivée de LLG, relie la fréquence de résonance et la perméabilité initiale à l’aimantation à saturation du matériau :

$$\frac{f_r}{\tilde{\gamma}} \sqrt{\mu'_i - 1} = M_s \quad (1.21)$$

Pour une couche mince dont l’aimantation est dans le plan (xy) , l’angle θ désignant l’angle entre l’aimantation et l’axe x est associé aux perméabilités initiales $\mu'_{i,x}$ et $\mu'_{i,y}$ par :

$$\tan^2 \theta = \frac{\mu'_{i,x} - 1}{\mu'_{i,y} - 1} \quad (1.22)$$

1.6. L'AIMANTATION DYNAMIQUEMENT COUPLÉE

En réalité, un matériau possède une aimantation non-homogène dont les origines sont diverses : les contraintes internes, les hétérogénéités, la dispersion d'aimantation angulaire et/ou en intensité, le champ dipolaire et l'effet de peau. Ainsi la quantité intégrale nommée aimantation dynamiquement couplée (M_μ) a été introduite [11] :

$$M_{\mu,x}(F) = \frac{1}{\tilde{\gamma}} \sqrt{\frac{2}{\pi} \int_0^F \mu''_x(f) \cdot f \, df} \quad (1.23)$$

$$M_{\mu,y}(F) = \frac{1}{\tilde{\gamma}} \sqrt{\frac{2}{\pi} \int_0^F \mu''_y(f) \cdot f \, df} \quad (1.24)$$

L'aimantation dynamiquement couplée est l'intégrale de la perméabilité imaginaire en fréquence multipliée par la fréquence et représente la quantité d'aimantation transverse au champ dynamique. Il va de soi que l'exactitude de $M_\mu(F)$ dépend de la précision de la mesure et de la borne supérieure d'intégration F . Afin d'affiner le calcul de $M_\mu(F)$, des termes correctifs ont été ajoutés [12] :

$$\frac{1}{\tilde{\gamma}} \sqrt{\frac{2}{\pi} \int_0^F \mu''(f) \cdot f \, df} = \frac{\pi}{2} N_y F_M^2 [1 - t - s \pm e] \quad (1.25)$$

Avec

$$\begin{aligned} t &= \frac{2}{\pi} \alpha (2N_x + N_y) \frac{F_M}{F} \\ s &= \frac{4\mu_0 a^2 \sigma}{p} N_y \frac{F_M^2}{F} \\ |e| &\leq \frac{\Delta\mu}{\pi N_y} \left(\frac{F}{F_M} \right)^2 \end{aligned}$$

où t est un terme de troncature à une fréquence finie et s tient compte de l'effet de peau. Le terme e représente l'incertitude de mesure avec $\Delta\mu$ l'incertitude liée à la valeur de μ . Les termes correctifs dépendent des composantes du tenseur du champ démagnétisant \bar{N} où $N_x = N_y$. α est le terme d'amortissement de Gilbert, $F_M = \tilde{\gamma} M_s$, a est la demi-épaisseur de la couche et σ est la conductivité électrique du matériau. p est un terme qui tient compte de l'inclusion ($p = 12$ pour une sphère et $p = 3$ pour un ellipsoïde plat). Il est également possible de calculer l'angle de facile aimantation

1.7. LA STRUCTURE EN DOMAINES MAGNÉTIQUES

à partir des quantités intégrales partielles :

$$\tan^2 \theta = \frac{M_{\mu,y}}{M_{\mu,x}} \quad (1.26)$$

Définissons la quantité intégrale totale $M_\mu(F) = \sqrt{M_{\mu,x}(F)^2 + M_{\mu,y}(F)^2}$. Lorsque la borne d'intégration supérieure F est suffisamment élevée, nous obtenons une des propriétés fondamentales de l'aimantation dynamiquement couplée :

$$M_s = M_\mu \left(1 + \frac{t+s}{2} \pm \frac{e}{2} \right) \quad (1.27)$$

Ainsi il est possible de déterminer l'aimantation à saturation du matériau M_s à partir du spectre de perméabilité mesuré selon deux directions (x et y). Cette relation entre la perméabilité hyperfréquence et l'aimantation du matériau a notamment été employée pour un large panel de matériaux allant des oxydes magnétiques (ferrites), aux couches minces polycristallines (Permalloy), en passant par les couches minces amorphes homogènes à base cobalt, jusqu'aux microfils nanocristallisés gainés de verre dont l'effet de peau est important [11, 12, 13, 14].

1.7 La structure en domaines magnétiques

Expérimentalement, un champ extérieur de 0.1 Oe est suffisant pour modifier l'aimantation macroscopique du fer doux, bien que son champ moléculaire soit de 10^7 Oe. Pour expliquer ce phénomène physique, P. Weiss introduit la notion de structure en domaines magnétiques où les moments magnétiques sont alignés parallèlement à l'intérieur d'un même domaine [4, 15]. Cette configuration des moments magnétiques minimise l'énergie totale du matériau, et notamment l'énergie dipolaire. La continuité entre deux domaines magnétiques est assurée par la rotation des moments dans une paroi magnétique.

Dans un matériau massif avec une aimantation dans le plan (xy), l'angle θ des moments magnétiques au sein d'une paroi de Bloch varie en z selon la relation suivante :

$$\theta(z) = 2 \arctan \left(\exp \frac{2z}{\delta_B} \right) \quad (1.28)$$

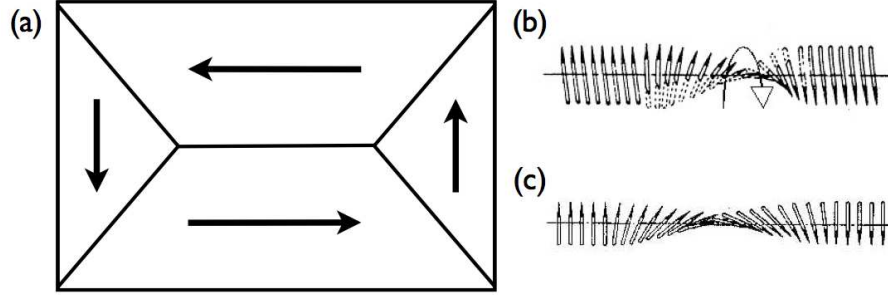


FIGURE 1.5 – Structure en domaines magnétiques (a). Paroi de Bloch (b) et paroi de Néel (c).

La paroi de Bloch décrit la couche de transition qui sépare deux domaines adjacents aimantés dans deux directions opposées (cf Figure 1.5 (b)). Bien que l'énergie d'échange tend à imposer une rotation des moments sur une distance infinie, l'énergie d'anisotropie encourage une rotation de 180° des moments sur une distance interatomique. De cette compétition résulte la largeur de la paroi de Bloch δ_B :

$$\delta_B = \sqrt{\frac{A}{K}} \quad (1.29)$$

δ_B vaut ≈ 100 nm pour les couches magnétiques douces à base cobalt. Lorsque l'épaisseur de la couche ne permet pas l'établissement d'une paroi de Bloch, la rotation des moments entre deux domaines magnétiques adjacents est confinée dans le plan de la couche. Cette paroi correspond à la paroi de Néel qui est représentée sur la Figure 1.5 (c).

1.7. LA STRUCTURE EN DOMAINES MAGNÉTIQUES

Première partie

Caractérisation des propriétés magnétiques de matériaux doux

Chapitre 2

Influence de l'état structural : exemple des microfils nanocristallisés gainés de verre

Sommaire

2.1	Introduction	32
2.2	Élaboration des microfils gainés de verre par le procédé Taylor-Ulitovsky	32
2.3	Alliages métalliques magnétiques doux	35
2.4	Influence de l'état nanocristallisé sur les propriétés magnétiques des microfils à base fer	39
2.5	Comportement en température de l'aimantation et de l'anisotropie des microfils nanocristallisés	46
2.6	Conclusion	58

Ce chapitre porte sur l'élaboration et la caractérisation magnétique de microfils gainés de verre, produits selon un procédé de tirage original nommé Taylor-Ulitovski. Une fois nanocristallisés, les alliages à base fer démontrent d'excellentes propriétés magnétiques douces ainsi qu'une bonne tenue en température, contrairement aux alliages amorphes à base cobalt. Ainsi, l'influence de l'état structural sur les propriétés magnétiques sera étudiée. De plus, le comportement en température des propriétés magnétiques statiques de tels matériaux est reporté et interprété.

2.1 Introduction

Les fils ferromagnétiques gainés de verre ont pour intérêt de posséder une faible coercivité et des niveaux de perméabilité élevés. De plus, un large panel de propriétés magnétiques est accessible en faisant varier la composition de l'alliage métallique ou la contrainte exercée par la gaine de verre sur le métal. Les compositions utilisées pour les microfils sont issues des rubans de trempe sur roue, qui font l'objet de nombreuses applications industrielles, notamment dans les transformateurs. La stabilité dans le temps des propriétés du microfil est garantie par la présence de la gaine de verre qui isole le cœur métallique de toute oxydation. Les microfils ont également la particularité de présenter un comportement magnétique anisotrope du fait de leur géométrie cylindrique. Par conséquent, les microfils gainés de verre sont appropriés pour des applications en hyperfréquence [16] et des capteurs magnéto-élastiques basés sur l'effet GMI¹ [17, 18]. Il faut néanmoins souligner que leur résistivité peut constituer un point restrictif pour des applications dans hyperfréquences en raison de l'effet de peau. Dans la continuité des thèses réalisées au laboratoire [19, 20], mes travaux portent plus spécifiquement sur l'étude en température des propriétés magnétiques des microfils nanocristallisés gainés de verre.

2.2 Élaboration des microfils gainés de verre par le procédé Taylor-Ulitovsky

2.2.1 Procédé de tirage Taylor-Ulitovsky

Le dispositif de tirage Taylor-Ulitovsky se distingue des autres procédés par la possibilité d'élaborer en continu des microfils amorphes dont le cœur métallique est recouvert d'une gaine de verre isolante. Cette technique a été découverte en 1924 par Taylor, qui élaborait les premiers filaments métalliques en étirant un bain métallique en fusion dans une enveloppe vitreuse visqueuse [21]. Du fait de l'instabilité du procédé, il était difficile de tirer de grandes longueurs de fil tout en conservant un diamètre constant. Pour cette raison, cette technique fût peu employée par la suite. Ce n'est que dans les années 60 que ce procédé a connu un réel essor sous l'impulsion d'Ulitovski, qui l'employa pour la fabrication de micro-conducteurs à base de

1. Giant Magneto-Impedance

2.2. ÉLABORATION DES MICROFILS GAINÉS DE VERRE PAR LE PROCÉDÉ TAYLOR-ULITOVSKY

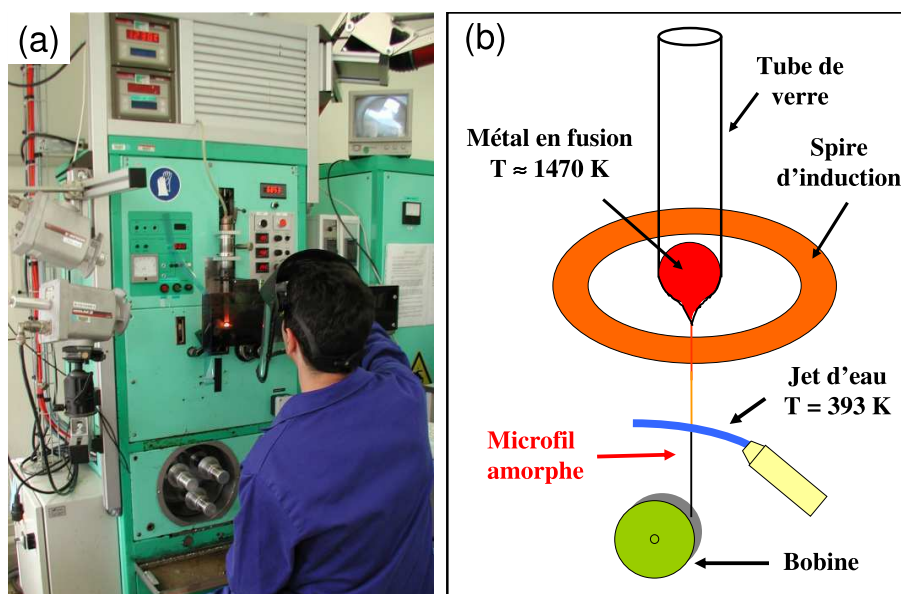


FIGURE 2.1 – Photographie (a) et schéma (b) du dispositif EFFIGIE de type Taylor-Ulitovski pour le tirage de microfils gainés de verre.

cuivre utilisés dans les micro-transformateurs². Pour ce faire, la charge métallique est fondue et maintenue en sustentation au sein d'un tube de verre par le biais d'un inducteur magnétique, et non plus par un chauffage au chalumeau comme utilisé précédemment par Taylor. La viscosité du tube de verre diminue par contact avec la charge métallique. Il est dès lors possible d'étirer un microfil qui viendra s'enrouler autour d'une bobine. Une fois le procédé Taylor-Ulitovski mis au point, il s'en suivit une forte utilisation essentiellement en ex-URSS et aux États-Unis pour la fabrication de microfils métalliques de compositions diverses (cuivre, argent, or ...). Dans les années 70 ont été produits les premiers microfils **métalliques amorphes** gainés de verre de composition Fe-Pt avec le procédé Taylor-Ulitovski [22]. Ce procédé d'élaboration a connu par la suite un léger désintérêt face à la capacité de produire des fils amorphes sans gaine de verre ($\phi = 80$ à $200 \mu\text{m}$) par une technique de type "in rotating water spinning". Néanmoins, l'activité de recherche exercée en Espagne, France, Israël, Moldavie et Roumanie reste soutenue et dynamique comme en témoigne les nombreux travaux liés aux propriétés magnétiques des microfils gainés de verre [23].

2. La présence de la gaine de verre assure l'isolation électrique du cœur métallique conducteur.

2.2. ÉLABORATION DES MICROFILS GAINÉS DE VERRE PAR LE PROCÉDÉ TAYLOR-ULITOVSKY

Au sein du laboratoire, la fabrication de microfils ferromagnétiques amorphes gainés de verre est réalisée à partir d'une installation de type Taylor-Ulitovski nommée **EFFIGIE** (Élaboration de Fils Ferromagnétiques Inductifs Gainés d'Isolant Électrique) et représentée sur la Figure 2.1.

2.2.2 Production de microfils gainés de verre

Trois étapes régissent la production d'un microfil gainé de verre à partir d'une charge métallique placée dans un tube de verre.

1. Fusion de l'alliage métallique (cf Figure 2.2 (a-b))

Une bille d'alliage métallique de masse $m = 6$ g est disposée dans un tube de verre dont l'extrémité inférieure est positionnée au centre d'un inducteur alimenté par un générateur haute fréquence. L'inducteur génère un champ magnétique intense qui induit des courants électriques dits de Foucault dans le métal. L'énergie thermique produite par ces courants se dissipe par effet Joule, de manière à atteindre la température de fusion de l'alliage. La répartition des lignes de champ, définie par la forme en coupelle de l'inducteur, permet de garder en sustentation le métal au centre de l'inducteur. L'extrémité du tube de verre se ramollit par contact avec la charge métallique en fusion.

2. Initiation et tirage du fil (cf Figure 2.2 (c-d))

L'initiation manuelle du fil à l'aide d'un capillaire n'est rendue possible qu'une fois l'alliage fondu et une viscosité du verre de 10^4 poises atteinte. Les premiers essais de tirage permettent d'évacuer les impuretés résiduelles. Dès lors, les conditions sont réunies pour commencer à tirer plusieurs kilomètres de microfil.

3. Trempe et bobinage du microfil gainé de verre (cf Figure 2.2 (e-f))

Le fil est ensuite étiré et enroulé autour d'une bobine. Entre temps, un dispositif de trempe, constitué d'un jet d'eau, assure l'amorphisation du cœur métallique. En maintenant les paramètres d'élaboration constants (température de travail, vitesse d'avance du verre et vitesse de bobinage), il est possible de tirer plusieurs dizaines de kilomètres de microfils à géométrie de fil similaire. En modifiant ces mêmes paramètres, l'éventail des géométries de microfil s'étend d'un diamètre métallique compris entre 2 et 20 μm avec une épaisseur de gaine de verre comprise entre 1 et 10 μm .

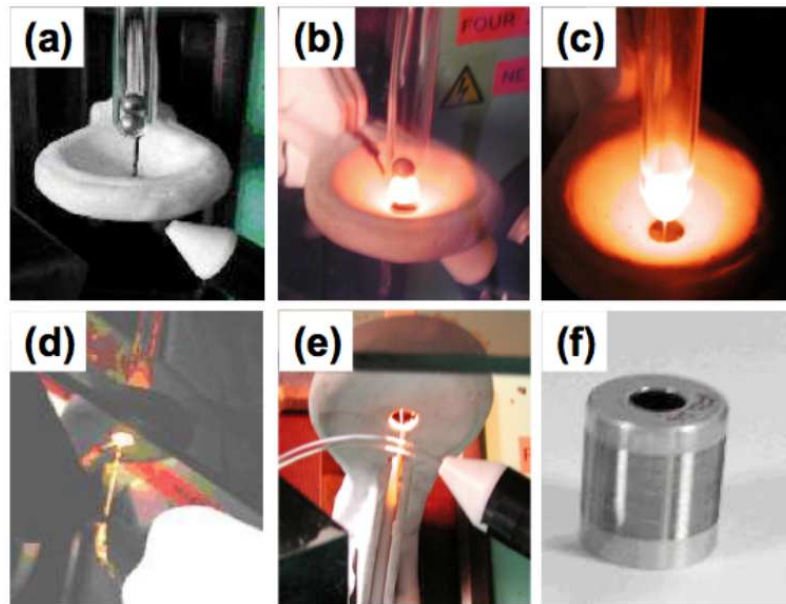


FIGURE 2.2 – Étapes d’élaboration d’un microfil ferromagnétique amorphe gainé de verre. La charge métallique placée dans un tube de verre (a) est fondue par induction électromagnétique (b). Le fil est initié à l’aide d’un capillaire (c), puis tiré en continu (d) afin d’être enroulé autour d’une bobine (f). Un jet d’eau assure la trempe du métal (e).

Il est à noter que seuls les alliages dont la température de fusion est inférieure à 1500 K, peuvent être élaborés à partir de l’installation **EFFIGIE** en raison de la puissance limitée de l’inducteur.

2.3 Alliages métalliques magnétiques doux

Les applications hyperfréquences des microfils nécessitent l’emploi d’alliages magnétiques doux, reconnus pour leurs niveaux de perméabilité élevés et leur faible champ coercitif. La recherche de nouvelles compositions repose essentiellement sur les rubans de trempe sur roue. Ensuite, ces compositions sont reprises pour les microfils. Il s’avère que les propriétés magnétiques douces sont fortement corrélées à la microstructure de l’alliage. Pour preuve, la Figure 2.3 reporte la variation du champ coercitif en fonction de la longueur de corrélation structurale δ_{cor} [24]. Cette longueur varie de quelques nm pour un amorphe, est corrélée au diamètre du grain (D) pour un nanocristallisé et enfin est macroscopique pour un matériau cristallin.

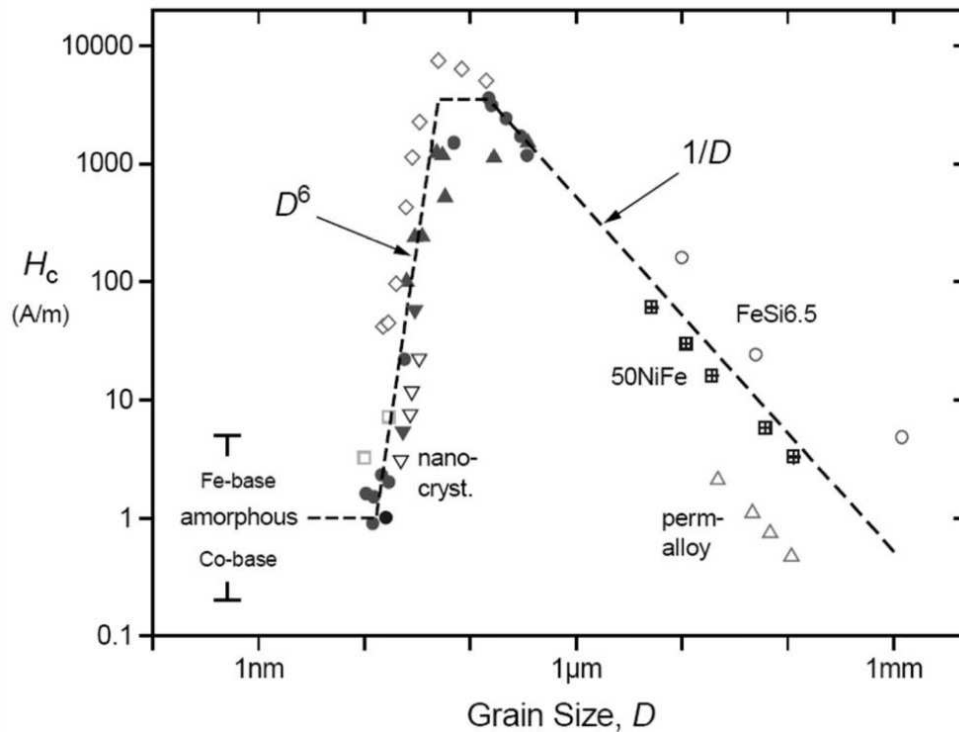


FIGURE 2.3 – Dépendance du champ coercitif en fonction de la longueur de corrélation structurale, d'après G. Herzer [24]. Il est notable que H_c suit une loi en D^6 pour les alliages nanocristallisés.

À la lecture de la Figure 2.3, certains matériaux cristallins ou polycristallins tels que le Permalloy ($\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$) présentent des propriétés magnétiques douces, en raison d'une faible anisotropie magnéto-cristalline intrinsèque et d'une diminution des défauts de paroi. Les matériaux amorphes et nanocristallisés possèdent également de telles propriétés puisque la longueur de corrélation structurale est inférieure à la longueur d'échange magnétique δ_{ex} . Du fait de la dépendance en D^6 du champ coercitif en fonction de la taille des grains, il est indispensable de maîtriser les processus de nucléation et de croissance des cristallites.

2.3.1 Alliages amorphes

Les alliages amorphes résultent de la combinaison d'un élément magnétique (métal de transition 3d : Fe, Ni et Co) et d'un métalloïde (groupes IIIA, IV4 et VA : B, C, Si, ...) à hauteur de 15 à 30 %, de manière à tendre vers la composition d'eutectique de l'alliage. Le métalloïde joue le rôle d'amorphisant en introduisant un désordre dans la solution solide. Trois sous-familles d'alliage se distinguent :

- **les alliages à base fer** tels que $\text{Fe}_{80}(\text{B}, \text{Si}, \text{C})_{20}$ possèdent une forte aimantation à saturation (1.4 - 1.8 kG) et un coefficient de magnétostriction positif élevé ($\lambda_s > 20 \times 10^{-6}$). Ces matériaux sont employés dans les transformateurs.
- **les alliages à base fer - nickel** présentent une aimantation à saturation (≈ 0.9 kG) et un coefficient de magnétostriction positif ($\lambda_s \approx 1 \times 10^{-6}$) plus faibles que les alliages à base fer. L'alliage le plus connu est le Permalloy de composition $\text{Fe}_{20}\text{Ni}_{80}$. Les domaines d'application sont les capteurs et le blindage à hautes fréquences.
- **les alliages à base cobalt** ont une aimantation à saturation comprise entre 0.5 et 1 kG mais présentent un coefficient de magnétostriction proche de zéro. En plus des applications communes avec les alliages Fe-Ni, ils sont également utilisés dans les têtes magnétiques.

Les microfils amorphes à base cobalt ont notamment été étudiés lors la thèse de Deprot [19]. Ses travaux ont permis d'établir les liens entre le champ d'anisotropie et les conditions d'élaboration, la géométrie du fil et le coefficient de magnétostriction. Ils contribuèrent également à la maîtrise du procédé et à la constitution d'abaques.

2.3.2 Alliages nanocristallisés

Les alliages amorphes possèdent de très bonnes propriétés magnétiques à température ambiante, mais celles-ci se dégradent fortement en température, typiquement à partir de 420 K pour l'alliage $\text{Co}_{76}\text{Fe}_4(\text{MoSiB})_{20}$. La faible température de Curie ($T_c \approx 570 - 670$ K) et la variation irréversible de la structure lors de la 1^{ère} montée en température expliquent la perte des propriétés magnétiques douces en température. Dans le cas des microfils, la différence des coefficients de dilatation entre le verre et le métal ainsi que l'évolution du coefficient de magnétostriction en température conduisent à une modification des contraintes internes du cœur métallique et contribuent également à la chute des propriétés magnétiques. En conséquence, l'emploi des alliages amorphes s'avère inapproprié pour des applications en température.

À la fin des années 80, Yoshizawa a présenté une nouvelle famille d'alliage à base fer nommée Finemet, de composition $\text{Fe}_{74.5-x}\text{Si}_{13.5}\text{B}_9\text{Nb}_3\text{Cu}_x$ avec $x < 2$ at.% [25]. L'obtention de propriétés magnétiques douces résulte de la nanocristallisation du métal via un traitement thermique. Cette nouvelle composition constitue une excellente alternative aux alliages amorphes puisqu'elle présente des propriétés magnétiques équivalentes mais se distingue par une température de Curie plus élevée. La microstructure des alliages nanocristallisés se compose de grains cristallisés α - (FeSi) d'une dizaine de nm plongés dans une matrice amorphe. Le cuivre joue le rôle de centre de nucléation lors de la cristallisation tandis que le niobium limite la croissance des grains. En effet, il est nécessaire de former des grains de taille nanométrique pour obtenir des propriétés magnétiques douces (cf Figure 2.3). L'ajout de cobalt permet d'augmenter l'aimantation à saturation ainsi que la température de Curie de l'alliage nanocristallisé [26]. Ainsi les alliages Finemet avec addition de Co proposent une meilleure tenue en température des propriétés magnétiques que le Finemet classique. Les alliages nanocristallisés ont été étudiés lors de la thèse de Dudek au cours de laquelle ont été mis en exergue la faisabilité d'élaborer des microfils nanocristallisés gainés de verre et leurs excellentes propriétés magnétiques en température pour des applications hyperfréquences [20].

Il existe également d'autres familles d'alliages magnétiques nanocristallisés à propriétés magnétiques douces : Nanoperm de composition $\text{Fe}_{88}\text{Zr}_7\text{B}_4\text{Cu}_1$ [27] et Hitperm de composition $(\text{Fe,Co})_{88}\text{Zr}_7\text{B}_4\text{Cu}_1$ [28].

2.3.3 Élaboration des alliages métalliques précurseurs

L'ensemble des alliages utilisés comme charge métallique pour l'élaboration des microfils est produit au laboratoire par une méthode de fusion au creuset froid (cf Figure 2.4). Tout comme le procédé Taylor-Ulitovski, la fonte des différents éléments (Co, Fe, Si, ...) placés dans un creuset froid est réalisée par induction électromagnétique et sous argon pour éviter toute oxydation. Le brassage électromagnétique assure le mélange des éléments fondus et garantit la formation d'un alliage homogène en composition. La coulée de l'alliage fondu est déversée dans un moule dont le lingot final pèse environ 30 g. La vitesse de trempe n'étant pas suffisante, l'alliage produit est dans un état polycristallin.

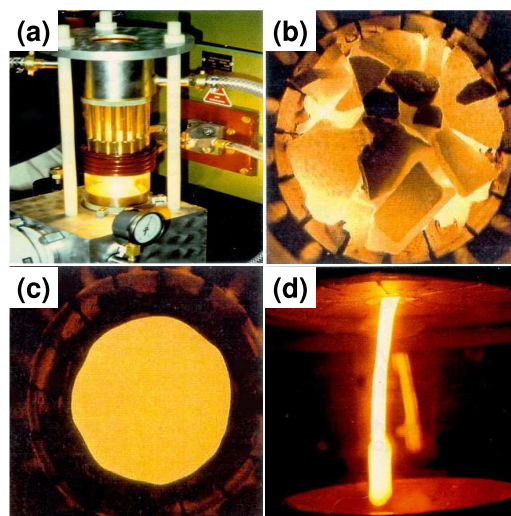


FIGURE 2.4 – Élaboration des alliages métalliques par fusion au creuset froid. Photographie du dispositif (a). Les éléments placés dans le creuset froid sont fondus par induction électromagnétique (b-c). Coulée de l'alliage (d).

2.4 Influence de l'état nanocristallisé sur les propriétés magnétiques des microfils à base fer

Du fait de leurs excellentes propriétés magnétiques douces et de leur bonne tenue en température, seuls les microfils nanocristallisés de diamètre métallique $8\ \mu\text{m}$ et d'épaisseur de gaine de verre $7\ \mu\text{m}$ sont étudiés dans ce chapitre. L'étude porte sur les alliages de composition à base fer (A_{Fe}) et avec ajout de cobalt (A_{FeCo}) dans le but de montrer l'intérêt de la nanocristallisation et de l'apport du cobalt sur les propriétés magnétiques statiques. Soit les alliages :

- A_{Fe} : $\text{Fe}_{73}\text{Si}_{16}\text{B}_7\text{Nb}_3\text{Cu}_1$
- A_{FeCo} : $(\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10})_{73}\text{Si}_{16}\text{B}_7\text{Nb}_3\text{Cu}_1$

2.4.1 Détermination des températures de cristallisation

Le traitement thermique des microfils amorphes doit être réalisé à une température supérieure à la température de cristallisation (T_x) afin d'activer les processus de nucléation et de croissance des cristallites. La gamme de température appropriée pour la formation de la phase nanocristallisée a été déterminée à partir d'une analyse thermique différentielle (ATD) et gravimétrique (ATG) (cf Figure 2.5).

2.4. INFLUENCE DE L'ÉTAT NANOCRISTALLISÉ SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES MICROFILS À BASE FER

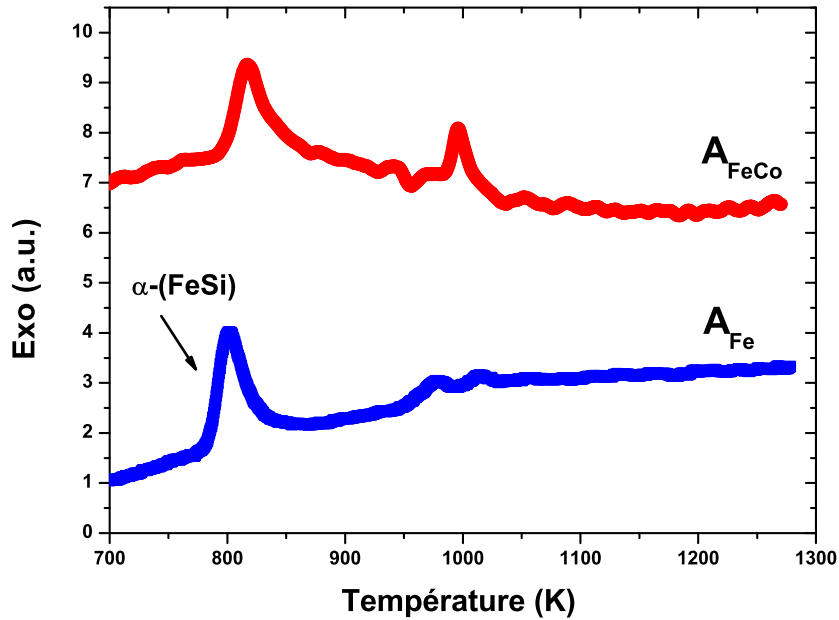


FIGURE 2.5 – Détermination de la température de cristallisation des alliages A_{Fe} et A_{FeCo} par analyse ATD.

Pour l'alliage A_{Fe} , le premier pic exothermique à $T = 780$ K correspond à la température de cristallisation de la phase α -(FeSi). La présence d'un second pic exothermique pour une température supérieure à 970 K est associée à la formation de borides de fer de type Fe_2B et Fe_3B . Remarquons que l'ajout de cobalt, même en faible quantité augmente légèrement la température de cristallisation ($T_x = 820$ K) par rapport à l'alliage A_{Fe} .

Les mesures ATD nous ont permis de définir la gamme de température de cristallisation des alliages A_{Fe} et A_{FeCo} . Dans la littérature [29], il est mentionné qu'un traitement thermique de 15 min est suffisant pour atteindre la fin du processus de cristallisation. Néanmoins, des traitements thermiques d'une heure seront réalisés par la suite afin de garantir une bonne reproductibilité des échantillons produits à partir de plusieurs recuits [20].

2.4.2 Effet de la nanocristallisation sur l'aimantation

Le cœur métallique des microfils de composition Finemet présente une structure amorphe à l'état brut de tirage. À la suite du traitement thermique à $T_a > T_x$, une microstructure biphasique se forme composée d'une phase cristalline α -(FeSi) immergée dans une matrice amorphe. Cette évolution microstructurale induit un adoucissement des propriétés magnétiques [23]. C'est pourquoi, l'influence de la nanocristallisation est étudiée au travers de la dépendance en température de l'aimantation à saturation de microfils initialement amorphes.

L'aimantation à saturation a été mesurée au VSM³ de 270 à 970 K (cf Annexe B). Un flux d'argon est délivré dans le four afin d'éviter toute oxydation de l'alliage métallique. Les échantillons consistent en 40 microfils amorphes gainés de verre de longueur 4.5 mm. Les fils sont insérés dans un capillaire en verre et sont disposés parallèlement au champ magnétique statique du VSM.

La Figure 2.6 reporte le comportement en température de M_s de microfils amorphes à base fer (A_{Fe} et A_{FeCo}). L'aimantation à saturation décroît jusqu'à atteindre une valeur nulle pour $T \approx 630$ K, qui correspond à la température de Curie (T_c) de la phase amorphe résiduelle. Ces résultats sont en accord avec la littérature qui reporte des valeurs de T_c comprises entre 470 et 670 K [30]. Il est remarquable que l'ajout de cobalt, même en faible proportion, permet d'augmenter la température de Curie des alliages amorphes. À titre comparatif, la courbe d'aimantation en température de l'alliage amorphe à base cobalt ($A_{CoFeSiB}$: $Co_{74}Fe_{16}Si_7B_3$) est également reportée sur la Figure 2.6. L'alliage $A_{CoFeSiB}$ présente une T_c voisine des alliages A_{Fe} et A_{FeCo} .

Pour une température supérieure à 750 K, une augmentation de l'aimantation à saturation se produit uniquement pour les alliages A_{Fe} et A_{FeCo} , en raison de la formation des nanocristallites α -(FeSi). Cette température est légèrement inférieure aux températures de cristallisation mesurées par ATD (cf Section 2.4.1). Les températures de Curie des alliages A_{Fe} et A_{FeCo} sont respectivement 870 K et 970 K. L'ajout de cobalt permet d'augmenter la T_c d'une part et d'atteindre des valeurs d'aimantation à saturation supérieures à haute température⁴.

3. Vibrating Sample Magnetometer

4. L'aimantation à saturation des alliages A_{Fe} et A_{FeCo} vaut 11 ± 0.5 kGauss.

2.4. INFLUENCE DE L'ÉTAT NANOCRISTALLISÉ SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES MICROFILS À BASE FER

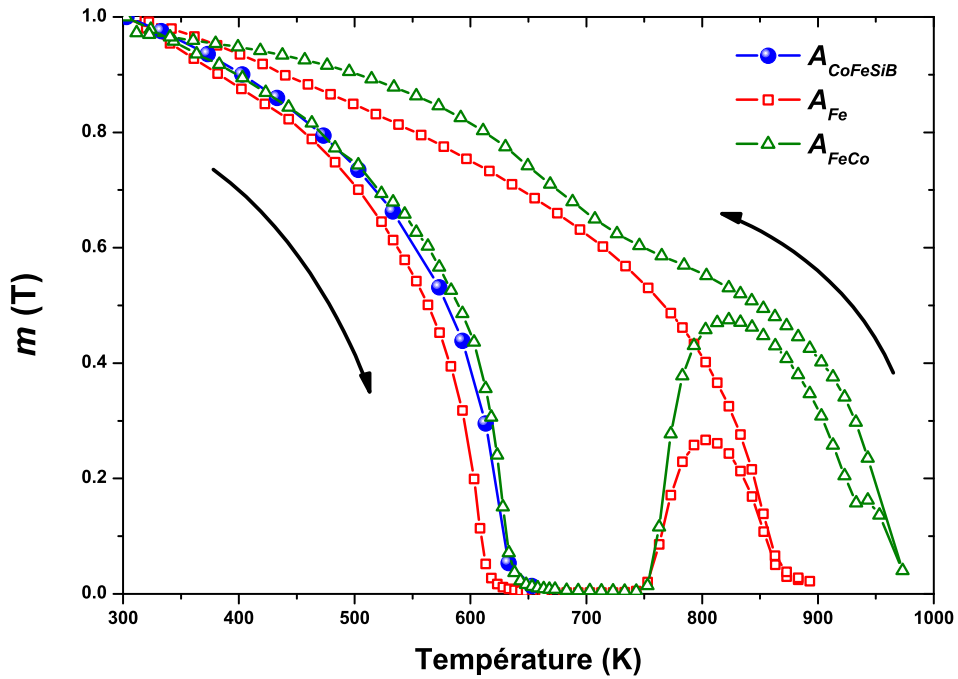


FIGURE 2.6 – Variation de l'aimantation réduite en fonction de la température pour les alliages à base fer A_{Fe} , A_{FeCo} et à base cobalt $A_{CoFeSiB}$.

En conclusion, la nanocristallisation des alliages A_{Fe} et A_{FeCo} résulte en une augmentation conséquente de la température de Curie par rapport aux alliages amorphes (ex : $A_{CoFeSiB}$). Ainsi les alliages nanocristallisés possèdent une meilleure tenue en température des propriétés magnétiques par rapport aux les alliages amorphes à base cobalt. L'ajout de cobalt en faible quantité permet d'augmenter de 10 % la température de Curie par rapport à l'alliage Finemet classique.

2.4.3 Variation de l'anisotropie magnétique en fonction du traitement thermique

Le comportement en température de l'aimantation ne renseigne aucunement sur la direction de l'aimantation et sur la valeur du champ d'anisotropie. C'est pourquoi, les cycles d'hystérésis de microfils amorphes ou nanocristallisés à différentes températures ont été mesurés. Les échantillons consistent en 9 fils de longueur 9 mm scotchés sur un substrat en verre et alignés parallèlement au champ d.c. du VSM.

Sur la Figure 2.7, les courbes d'aimantation de microfils brut de tirage mesurées au VSM sont de forme carrée avec un champ coercitif de 5 Oe et une aimantation rémanente de 1. La forme du cycle indique que l'aimantation est parallèle à l'axe du fil. Par conséquent, les microfils brut de tirage sont inappropriés pour des applications hyperfréquences qui nécessitent une perméabilité parallèle à l'axe du fil et donc une aimantation orthoradiale.

Lorsque la température de recuit est supérieure à la température de cristallisation, le cycle d'hystérésis varie d'une forme carrée à inclinée et fermée (cf Figure 2.7). Cette évolution témoigne d'un passage d'une aimantation majoritairement axiale à une aimantation orthoradiale. De plus, le champ d'anisotropie augmente proportionnellement avec la température de recuit. Il est intéressant de noter que pour une même température de recuit, le champ d'anisotropie des microfils de composition A_{FeCo} est plus faible que celui des fils d'alliage A_{Fe} .

Les valeurs du champ d'anisotropie, du coefficient de magnétostriction et de la fraction volumique en cristallites pour les alliages A_{Fe} et A_{FeCo} nanocristallisés à différentes températures sont récapitulées dans la Table 2.1. Le coefficient de magnétostriction change de signe et croît en fonction de la température de recuit. Les configurations d'aimantation axiale et orthoradiale sont respectivement associées à un coefficient de magnétostriction positif et négatif [20]. De part l'existence d'une microstructure biphasique, une loi de mélange permet de calculer au 1^{er} ordre la valeur de λ_s de l'alliage nanocristallisé en fonction des λ_s de la phase cristalline et de la matrice amorphe ainsi que de la fraction volumique en cristallites (ν_{cr}) :

$$\lambda_s \approx \nu_{cr} \lambda_s^{\text{FeSi}} + (1 - \nu_{cr}) \lambda_s^{\text{am}} \quad (2.1)$$

2.4. INFLUENCE DE L'ÉTAT NANOCRISTALLISÉ SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES MICROFILS À BASE FER

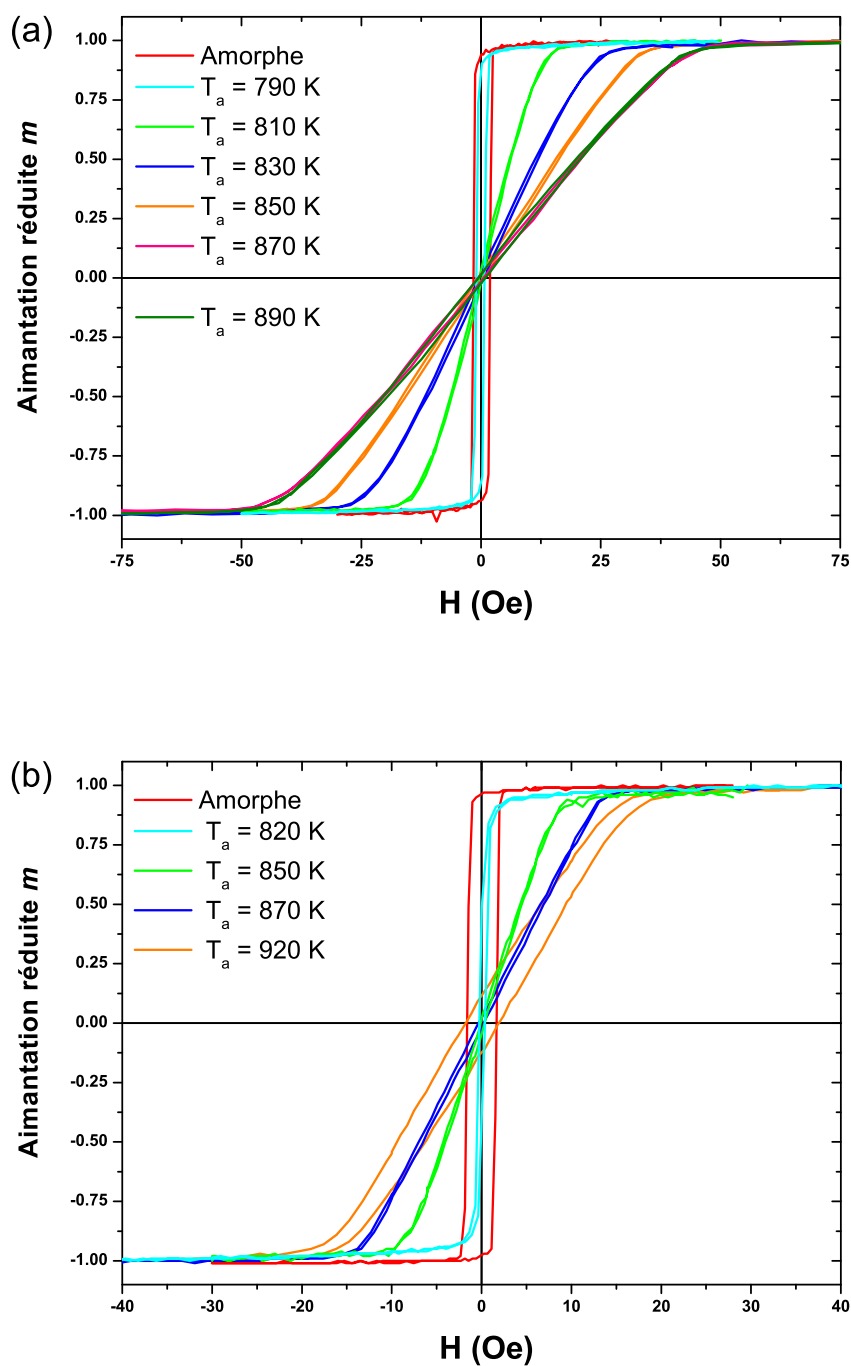


FIGURE 2.7 – Cycles d'hystérésis de microfils brut de tirage (amorphe) et après traitement thermique (nanocristallisé) : A_{Fe} (a) et A_{FeCo} (b).

2.4. INFLUENCE DE L'ÉTAT NANOCRISTALLISÉ SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES DES MICROFILS À BASE FER

avec $\lambda_s^{\text{FeSi}} = -6 \times 10^{-6}$ et $\lambda_s^{\text{am}} \approx 2 \times 10^{-5}$ [31]. Cette relation a été employée afin d'estimer la fraction volumique en cristallites à partir des coefficients de magnétostriction λ_s mesurés. Ainsi calculée, la fraction volumique cristalline croît avec la température de recuit respectivement de $\nu_{cr} = 0.74$ pour $T_a = 810$ K à $\nu_{cr} = 0.83$ pour $T_a = 870$ K (cf Table 2.1). Une fraction cristalline volumique élevée est cohérente avec la littérature [32]. Il est bien connu que le coefficient de magnétostriction varie avec la température de recuit [33], mais il est cependant remarquable que λ_s change d'un ordre de grandeur alors que ν_{cr} varie très faiblement ($\nu_{cr} \approx 0.8$).

Alliage	Température de recuit (K)	H_K (Oe)	λ_s ($\times 10^{-7}$)	Fraction volumique en cristallites
A_{Fe}	810	14	6.7	0.74
	830	24	-5.2	0.79
	850	29	-11	0.81
	870	31	-16	0.83

TABLE 2.1 – **Champ d'anisotropie, coefficient de magnétostriction et fraction volumique en cristallites calculée en fonction de la température de recuit pour l'alliage A_{Fe} .**

En parallèle, des analyses microstructurales ont été réalisées par diffraction des rayons-X de microfils gainés de verre après traitement thermique. Il est à noter que des caractérisations par diffraction des rayons-X ou de neutrons ont déjà été reportées dans la littérature [26, 34, 35, 36]. La taille apparente des cristallites est estimée à partir de la méthode de Scherrer. La fraction volumique cristalline ν_{cr} se déduit du rapport des intensités associées à la phase cristalline et à la phase amorphe : $\nu_{cr} = I_{cr}/(I_{cr} + I_{am})$. En effet, les raies de diffraction se composent d'une contribution Lorentzienne liée à la phase amorphe et d'une contribution Gaussienne liée à la phase cristalline [37]. En conclusion, la taille apparente des cristallites est estimée à 17 ± 2 nm avec $\nu_{cr} = 0.8 \pm 0.05$ pour des microfils de composition Finemet recuits à $T_a = 870$ K, en accord avec la valeur de ν_{cr} calculée à partir de (2.1).

De plus, des expériences de diffraction de neutrons ont été menées au Laboratoire Léon Brillouin à Saclay afin de caractériser l'évolution de la microstructure (D , ν_{cr}) en fonction de la température. Pour ce faire, la gaine des microfils amorphes de composition A_{Fe} et A_{FeCo} a été dissoute par immersion des microfils dans une

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

solution d'acide fluorhydrique. Puis, les microfils dégainés ont été broyés de manière à obtenir une poudre de taille micrométrique. Malheureusement, l'analyse fine des données neutrons acquises sur G4.1 et 3T.2 n'a pas été concluante en raison de l'oxydation en surface du métal.

En conclusion, l'augmentation du champ d'anisotropie avec la température de recuit résulte :

1. de l'augmentation de l'anisotropie magnéto-élastique via l'accroissement du coefficient de magnétostriction à saturation.
2. de l'augmentation de l'anisotropie magnéto-cristalline via l'accroissement de la fraction volumique en cristallites⁵.

À défaut d'avoir pu exploiter les diagrammes de diffraction de neutrons, les valeurs de ν_{cr} ont été calculées à partir de (2.1), lesquelles sont en accord avec l'ordre de grandeur estimé par diffraction des rayons-X.

2.5 Comportement en température de l'aimantation et de l'anisotropie des microfils nanocristallisés

Le comportement en température des propriétés magnétiques a été spécifiquement étudié pour l'alliage **de composition Finemet** A_{Fe} . Des traitements thermiques à différentes températures ont été réalisés dans le but d'obtenir des microfils nanocristallisés avec différentes fractions volumiques en cristallites. Les échantillons consistent en 40 microfils nanocristallisés gainés de verre de longueur 5.5 mm alignés parallèlement au champ magnétique statique appliqué par le VSM. Les microfils sont disposés sur une plaquette de verre de dimensions $9 \times 6 \text{ mm}^2$ et fixés en leur extrémité à l'aide d'un liant haute température. La Figure 2.8 montre qu'une réduction de la longueur et l'utilisation d'un liant ne modifient pas la valeur du champ d'anisotropie des microfils.

La Figure 2.9 présente les courbes d'aimantation en fonction de la température de T_{amb} à 970 K pour des microfils recuits à 870 K. Sous l'effet de la température, les cycles d'hystérésis sont toujours inclinés et fermés mais une baisse conjuguée de

5. Nous verrons par la suite que le diamètre des cristallites contribue également à la valeur de l'énergie d'anisotropie magnéto-cristalline [24] .

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

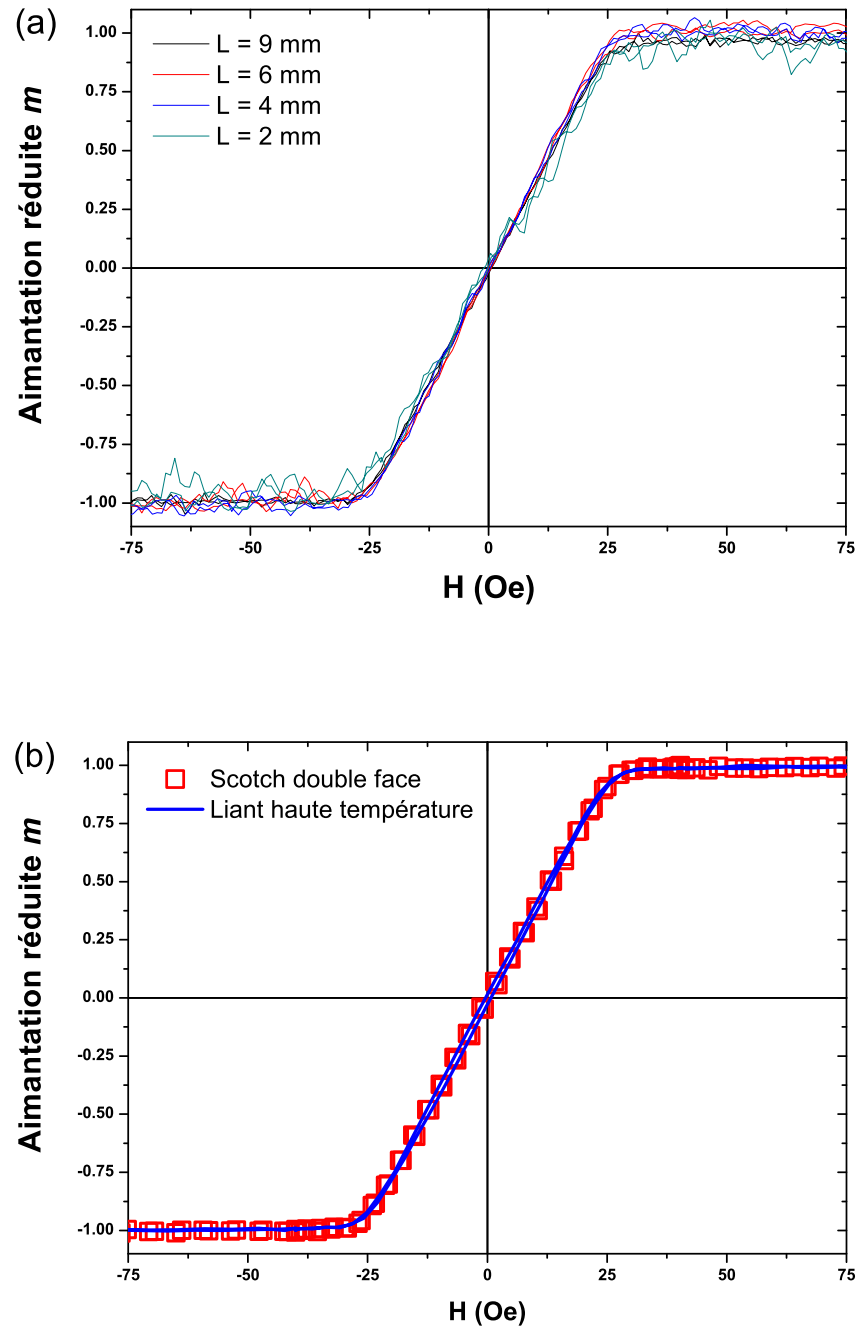


FIGURE 2.8 – Influence de la longueur des microfils (a) et du liant (b) sur les propriétés statiques des microfils.

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

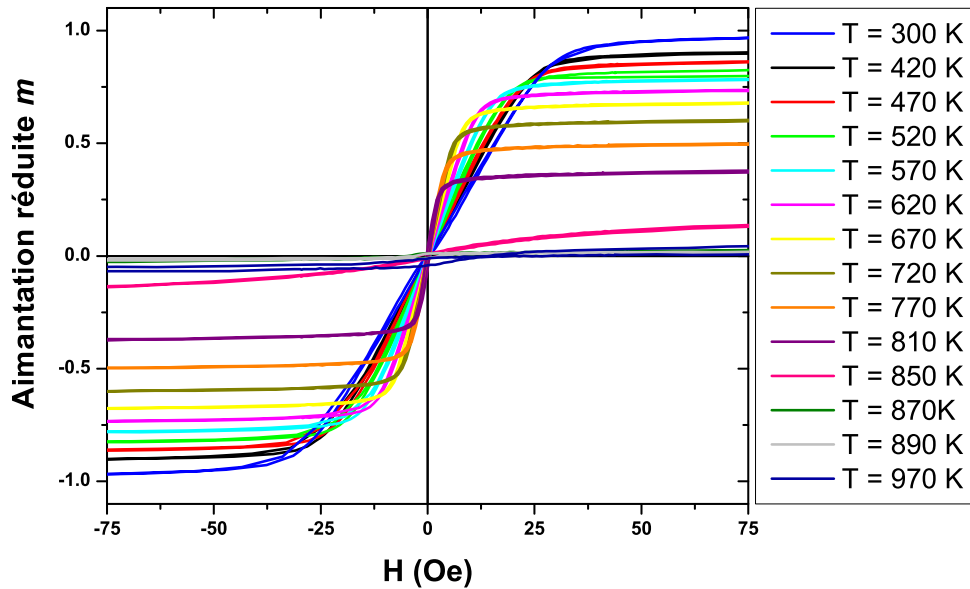


FIGURE 2.9 – Courbes d'aimantation en fonction de la température pour des microfils nanocristallisés à $T_a = 870$ K.

l'aimantation à saturation et du champ d'anisotropie est observée. Il est à noter que le champ coercitif reste inférieur à quelques Oe sur la gamme de température étudiée. Ce comportement indique qu'il n'y a ni oxydation de l'alliage ni augmentation du diamètre des grains cristallisés (cf Section 2.3).

2.5.1 Dépendance en température de l'aimantation

À partir des cycles d'hystérésis mesurés en température, nous pouvons tracer la variation de l'aimantation en fonction de la température pour des microfils de composition A_{Fe} recuits de 810 à 870 K (cf Figure 2.10). En accord avec la théorie du ferromagnétisme, l'aimantation à saturation décroît continûment avec la température et atteint une valeur nulle pour une température égale à la température de Curie, soit $T_c = 870$ K. La température du traitement thermique n'influe aucunement sur la température de Curie de l'alliage nanocristallisé puisqu'elle correspond uniquement à celle de la phase cristallisée α -(FeSi) [38]. Les courbes $M_s(T)$ diffèrent

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

légèrement selon la température de recuit. En effet, la courbe d'aimantation pour $T_a = 810$ K montre un point d'inflexion à $0.7 T_c$ dû à la transition ferromagnétique - paramagnétique de la phase amorphe ($T_c^{\text{am}} \approx 630$ K, cf Figure 2.6). Les courbes d'aimantation en température pour des températures de traitement thermique plus élevées ne montrent plus cette discontinuité, indiquant un haut degré de cristallisation de l'alliage, typiquement supérieur à 78 % [30].

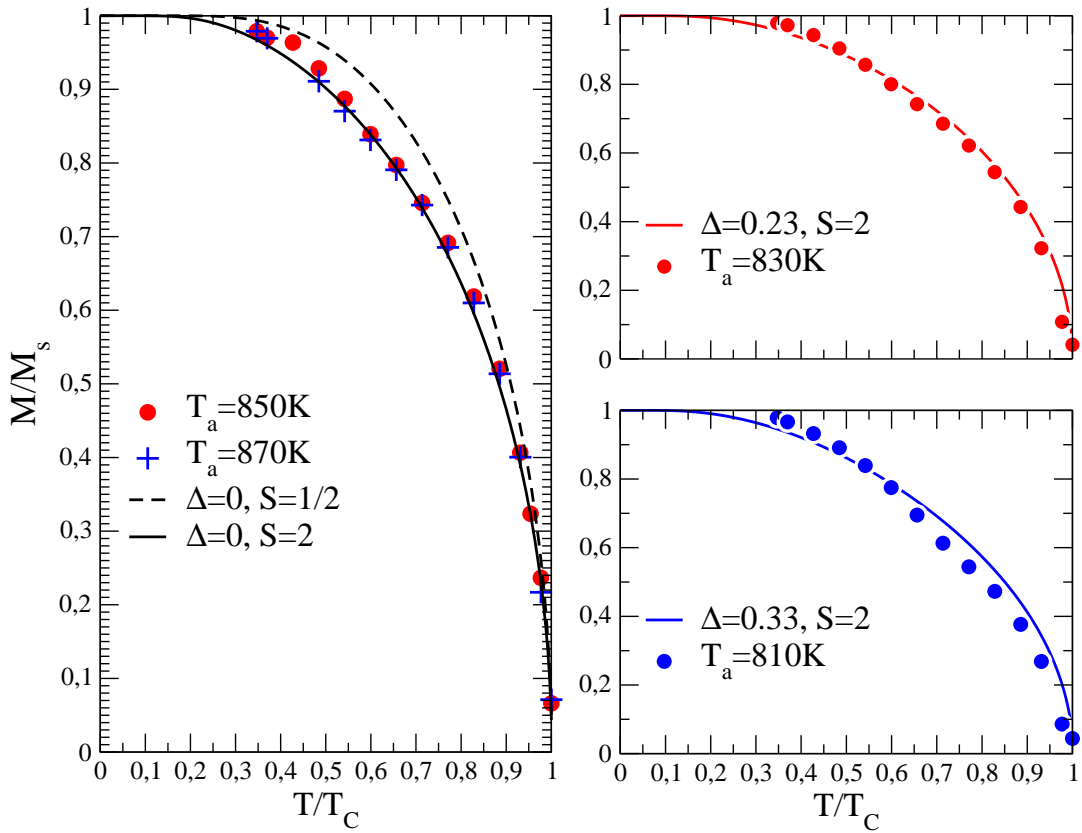


FIGURE 2.10 – Dépendance de l'aimantation à saturation réduite en fonction de la température pour des microfils de composition A_{Fe} recuits à différentes températures. Les données expérimentales sont comparées aux résultats théoriques obtenus par champ moyen sans et avec fluctuations d'échange Δ .

Dans le cas d'un matériau ferromagnétique cristallin, une loi de puissance avec pour exposant critique universel ($\beta = 0.36$) est généralement employée pour modéliser les courbes d'aimantation au voisinage de la température de Curie [39, 40]. En raison de la gamme de température étudiée (300 - 970 K), il est nécessaire de recourir à un

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

modèle plus général. De part la nature nanocristalline de l'alliage, la contribution magnétique de la phase amorphe doit être prise en compte lors de la modélisation [41]. Handrich a proposé un modèle dans lequel le champ moyen de chaque site atomique de la phase amorphe est une source de fluctuation de l'intégrale d'échange associée à l'interaction moyenne des cristallites entre eux [42]. Par la suite, ce modèle a été repris et normalisé par Kaneyoshi [43]. Lorsque l'induction magnétique appliquée est nulle, l'aimantation réduite m s'exprime comme la solution d'une équation implicite :

$$m = \frac{1}{2} \{ \mathfrak{B}_s(\alpha m(1 + \Delta)) + \mathfrak{B}_s(\alpha m(1 - \Delta)) \} \quad (2.2)$$

$$\text{avec} \quad \alpha = \frac{3S}{S+1} \frac{1}{\tau}, \quad \tau = \frac{T}{T_c}, \quad m(T) = \frac{M_s(T)}{M_s(0)}.$$

\mathfrak{B}_s est la fonction de Brillouin de spin total S . Δ est un paramètre représentatif des fluctuations d'échange liées au désordre atomique. Sa valeur varie de 0 (aucune fluctuation) à 1 (fluctuations maximales). Dans le cas des alliages de la famille Finemet, l'atome de fer est considéré dans son état fondamental pour lequel le moment orbital est figé. Comme son moment magnétique est supposé localisé, la valeur de spin S est prise égale à 2. Une première modélisation en champ moyen et sans fluctuation ($S = 2$ et $\Delta = 0$) est reportée sur la Figure 2.10. Un bon accord est trouvé entre les résultats expérimentaux et l'approximation en champ moyen pour les échantillons recuits à 850 et 870 K. Ainsi l'approximation en champ moyen s'avère être une approche raisonnable pour tenir compte de la contribution magnétique due à la phase cristalline. Pour les températures de recuit $T_a = 810$ et 830 K, l'aimantation réduite chute plus rapidement que l'approximation en champ moyen sans fluctuation. Ce comportement a déjà été observé dans des alliages nanocristallisés avec une proportion non négligeable d'amorphe [41, 44]. Afin de tenir compte des perturbations occasionnées par la phase amorphe, une simulation des courbes d'aimantation en champ moyen avec fluctuations d'échange a été réalisée (cf Figure 2.10). Une légère hausse de la proportion en phase amorphe se traduit bien par une augmentation des fluctuations d'échange : $\Delta = 0.23$ et $(1 - \nu_{cr}) = 0.21$ pour $T_a = 830$ K ; $\Delta = 0.33$ et $(1 - \nu_{cr}) = 0.26$ pour $T_a = 810$ K.

Une théorie de champ moyen est suffisante pour reproduire le comportement en température des microfils nanocristallisés avec une fraction volumique cristalline élevée ($\nu_{cr} > 0.8$). Dans le cas contraire, un paramètre de désordre doit être introduit.

2.5.2 Dépendance en température de l'anisotropie

Comme pour l'aimantation à saturation, l'énergie d'anisotropie magnétique en température est calculée à partir des cycles d'hystérésis. L'énergie d'anisotropie magnétique expérimentale K_{exp} correspond à l'aire entre les courbes d'aimantation mesurées selon l'axe facile et selon l'axe difficile [45] :

$$K_{exp} = \mu_0 \int_0^{M_s} H.dM \quad (2.3)$$

Le comportement en température de K_{exp} est représenté sur la Figure 2.11 pour les échantillons recuits de 810 à 870 K. L'anisotropie mesurée décroît avec la température et tend vers 0 pour $T = T_c$. Pour une température inférieure à 570 K, le

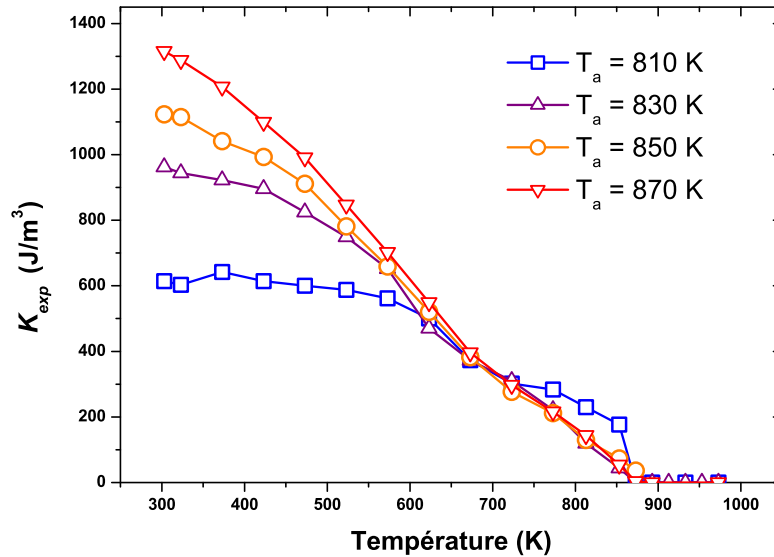


FIGURE 2.11 – Dépendance en température de l'anisotropie magnétique K_{exp} pour des microfils de composition A_{Fe} recuits entre 810 et 870 K.

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

comportement de l'anisotropie magnétique varie fortement selon la température de recuit. L'anisotropie dépend du coefficient de magnétostriction d'une part et de la proportion en phase cristalline d'autre part. Du fait de la forte variation du coefficient de magnétostriction en fonction de T_a (cf Table 2.1), l'anisotropie magnéto-élastique semble être la contribution prépondérante de K_{exp} . Au contraire, pour une température supérieure à 570 K, la dépendance en température de l'anisotropie magnétique est indépendante de la température de recuit. Ce changement de comportement se produit à $T = 570$ K, proche de la température de Curie de la phase amorphe résiduelle ($T_c^{am} \approx 630$ K). Il semblerait que l'anisotropie magnétique K_{exp} dépende uniquement de la phase cristalline à haute température.

2.5.2.1 Origine de l'anisotropie magnétique dans les microfils nanocristallisés

Du fait de la contrainte exercée par la gaine de verre sur le cœur métallique et de l'état nanocristallisé, une expression de la densité d'anisotropie magnétique des microfils gainés de verre est formulée de la manière suivante :

$$K_{exp} = \underbrace{\nu_{cr}^2 D^6 \frac{K^4}{A^3}}_{K_{m-c}} - \underbrace{\frac{3}{2} \lambda_s \sigma}_{K_{m-el}} + K_r \quad (2.4)$$

L'anisotropie magnéto-cristalline (K_{m-c}) obtenue à partir du modèle d'anisotropie aléatoire [24] affiche une dépendance en puissance 6 en fonction du diamètre D des grains nanocristallisés. Elle est également proportionnelle au carré de la fraction volumique en cristallites. La constante d'échange vaut $A = 10^{-11}$ J/m et la constante d'anisotropie associée au grain α -(FeSi) vaut $K = 8$ kJ/m³ [46]. La relation (2.1) a permis d'estimer la fraction volumique en cristallites pour le calcul de K_{m-c} . L'anisotropie magnéto-élastique (K_{m-el}) dépend de la contrainte exercée par la gaine de verre sur le cœur métallique et du coefficient de magnétostriction à saturation du métal. Dans l'approche présentée, le coefficient de magnétostriction est supposé constant en température. K_r correspondrait à une anisotropie magnétique résiduelle ou résultante. Elle serait induite lors de l'élaboration du microfil amorphe ou lors du traitement thermique.

La contrainte exercée par la gaine de verre sur le cœur métallique et la magnétostriction non nulle donnent lieu à une anisotropie magnéto-élastique considérable.

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

Connaître l'état de contraintes du fil métallique est donc d'un intérêt majeur pour la calcul de l'anisotropie magnétique. La différence des coefficients de dilatation thermique entre le verre ($\alpha_{\text{verre}} = 3.3 \times 10^{-6}/\text{K}$) et le métal ($\alpha_{\text{métal}} = 12 \times 10^{-6}/\text{K}$) provoque une contraction du cœur métallique plus importante que celle de la gaine verre lors de la trempe du microfil. Il en résulte que la gaine de verre contraint le cœur métallique. Dès lors, l'anisotropie magnéto-élastique K_{m-el} dépend de la contrainte définie en coordonnées cylindriques en raison de la géométrie en fil :

$$K_{m-el} = -\frac{3}{2}\lambda_s(\sigma_{zz} - \sigma_{\theta\theta}) , \quad (2.5)$$

où σ_{zz} est la contrainte selon l'axe du fil et $\sigma_{\theta\theta}$ est la contrainte orthoradiale. Plusieurs modèles de contraintes ont été développés pour modéliser l'état de contraintes d'un microfil gainé de verre [47, 48, 49, 50]. En particulier, Dudek a écrit un modèle de contraintes basé sur une approche thermo-élastique qui tient compte de la différence des coefficients de dilatation thermique [20]. Les expressions analytiques de σ_{ii} avec $i = r, \theta, z$ calculées de cette manière sont bien en accord avec celles reportées par Torcunov [47] :

$$\sigma_{zz} = \sigma_{rr} \frac{2 + \Lambda(1 + \eta)}{1 + \Lambda\eta} , \quad (2.6)$$

$$\sigma_{rr} = \sigma_{\theta\theta} = \frac{3E_{\text{verre}}(\alpha_{\text{verre}} - \alpha_{\text{métal}})\Delta T \cdot \Lambda}{4 + \Lambda(3 + \eta)} , \quad (2.7)$$

où σ_{rr} est la contrainte radiale. $\Delta T = T_{\text{finale}} - T_{\text{initiale}}$ correspond à la différence entre la température de solidification du microfil gainé de verre et la température de mesure. Rappelons que la température de transition vitreuse de l'alliage métallique est égale à $T_g = 770 \text{ K}$ et que celle du verre $T_g = 840 \text{ K}$. Le rapport des sections de verre et du métal est défini par $\Lambda = S_{\text{verre}}/S_{\text{métal}}$ et le rapport des modules d'Young par $\eta = E_{\text{verre}}/E_{\text{métal}}$. Comme évoqué précédemment pour les coefficients de dilatation thermique, il apparaît clairement selon ce formalisme que la différence de température (ΔT) et le rapport des surfaces Λ influent fortement sur l'état de contraintes du cœur métallique et donc sur la valeur de l'anisotropie. Cependant Dudek a conclu que ce modèle était plus ou moins représentatif de l'état de contraintes du microfil selon la nature de l'alliage et de l'épaisseur de la gaine de verre [20].

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

2.5.2.2 Estimation de l'anisotropie K_r

Dans la formulation proposée de l'anisotropie magnétique, K_{exp} a été mesurée et K_{m-c} et K_{m-el} ont des expressions bien définies. Il est ainsi possible d'estimer la contribution de K_r :

$$K_r(T) = K_{exp}(T) - K_{m-c}(T) - K_{m-el}(T) \quad (2.8)$$

L'anisotropie magnéto-élastique en température est calculée en appliquant la relation (2.7) déduite du modèle de contraintes. À température ambiante, l'anisotropie magnéto-élastique varie de 340 J/m³ pour $T_a = 830$ K à 1040 J/m³ pour $T_a = 870$ K. La fraction volumique cristalline a été calculée pour différentes températures de recuit (cf Table 2.1) et le diamètre des grains est compris entre 10 et 20 nm [23]. À partir de l'équation (2.4), l'anisotropie magnéto-cristalline est estimée à 30 J/m³ pour un diamètre de grains $D = 15$ nm. Outre la confirmation de l'existence d'une structure nanocristallisée pour des microfils recuits à 870 K, l'analyse au MET a révélé une dispersion en taille des cristallites (cf Figure 2.12). Pour en tenir compte, une distribution de type Gaussienne avec un écart type $\sigma = 5$ nm est considérée et donne une valeur de K_{m-c} de 97 J/m³. Dans ce cas, **l'anisotropie magnéto-élastique est très supérieure à l'anisotropie magnéto-cristalline.**

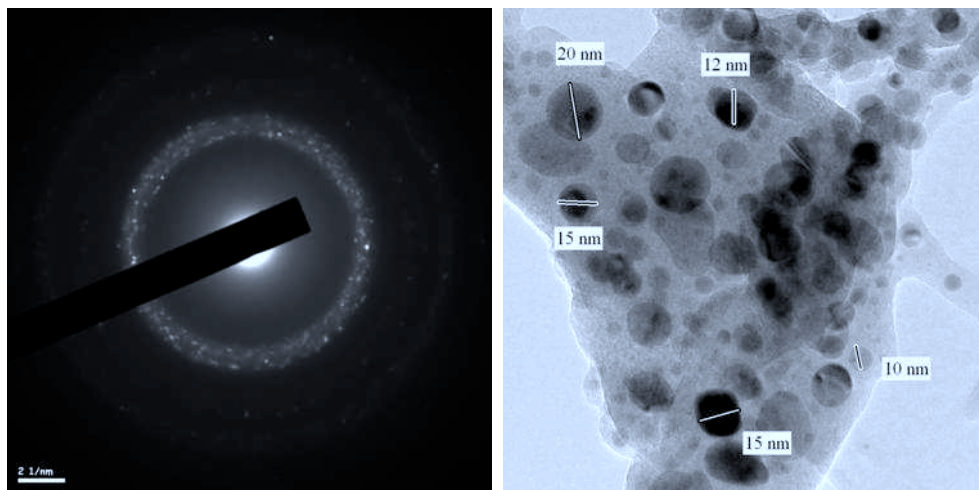


FIGURE 2.12 – Analyse de l'alliage A_{Fe} au microscope électronique en transmission : cliché de diffraction (a) et microstructure (b). Les microfils ont été recuits à 870 K pendant 1 h.

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

La Figure 2.13 (a) représente la dépendance en température de K_r estimée pour l'alliage A_{Fe} sur la gamme de température 290 – 570 K. Les données de K_r pour un traitement thermique $T_a = 810$ K avec $\lambda_s > 0$ ne sont pas représentées puisque la structure en domaines magnétiques est différente des alliages à magnétostriction négative. Il est notable que K_r reste peu ou prou constante sur la gamme de température représentée mais sa valeur croît avec la température de recuit. De plus, il semble que K_r est proportionnelle à la valeur du coefficient de magnétostriction puisque K_r et λ_s à $T_a = 850$ K sont le double de K_r et λ_s à $T_a = 830$ K. Pour preuve, la variation en température de l'anisotropie multipliée par le rapport $\frac{\lambda_s^{T_a}}{\lambda_s^{T_a=870K} \times K_r^{T_a=870K}}$ est représentée sur la Figure 2.13 (b). Entre 300 et 500 K, les anisotropies normalisées tendent à être équivalentes, quelle que soit la température du traitement thermique.

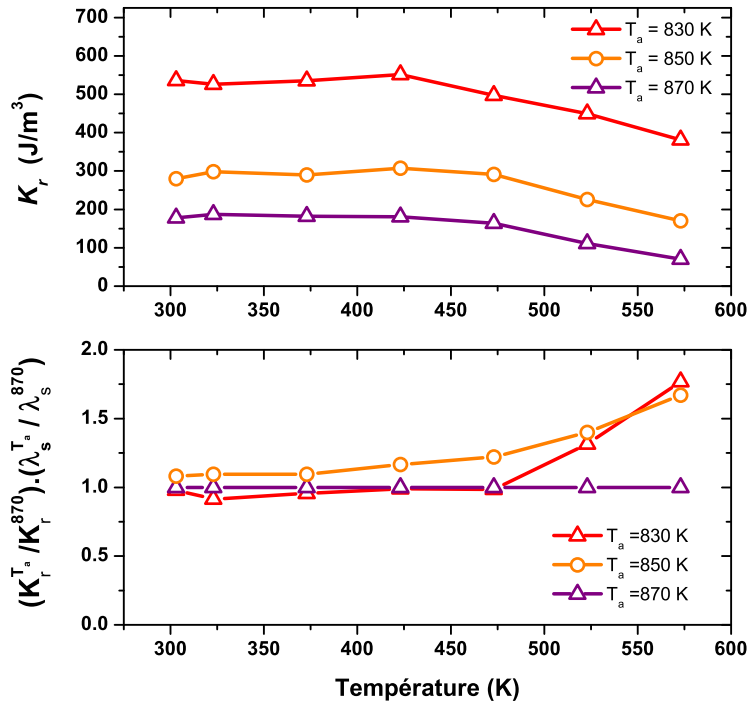


FIGURE 2.13 – Dépendance en température de l'anisotropie magnétique résultante K_r (a) et réduite par les coefficients de magnétostriction (b), pour des microfils de composition A_{Fe} recuits à différentes températures.

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

Il est surtout remarquable que K_r constitue une contribution relativement élevée de l'anisotropie expérimentale. Plusieurs hypothèses peuvent être énoncées pour expliquer ce résultat :

- le modèle de contraintes considéré est inapproprié pour décrire le comportement des microfils nanocrystallisés. Néanmoins, la proportion entre K_r et λ_s montre que l'anisotropie résultante des microfils est essentiellement d'origine magnéto-élastique, et plus particulièrement fonction de λ_s , et non des contraintes.
- le coefficient de magnétostriction fluctue en fonction de la température [51].
- K_r est une anisotropie résultante des contraintes exercées par la gaine de verre durant le refroidissement de T_a à T_{amb} , comme il existe l'anisotropie induite par recuit sous contrainte pour les rubans [52]. De ce fait, le modèle de contraintes ne pourrait décrire ce phénomène physique.

2.5.3 Corrélation entre $M_s(T)$ et $K(T)$

En ce qui concerne les matériaux ferromagnétiques, Van Vleck a démontré qu'à basse température, le comportement de la moyenne des spins est relié à l'aimantation selon une loi de puissance $m(T, H)^{l(l+1)/2}$ [53]. Cette relation a été développée dans un formalisme décrit par la mécanique quantique statistique dans le cas d'une anisotropie de type un seul ion. Kittel a appliqué avec succès cette loi de puissance pour expliquer la dépendance en température des coefficients de magnétostriction [54]. Callen et Callen ont repris cette loi afin de décrire la dépendance en température de l'anisotropie en fonction de sa symétrie [55]. Il en résulte l'expression suivante :

$$\frac{K_l(T)}{K_l(T_0)} = m(T, H)^{l(l+1)/2}, \quad (2.9)$$

où l correspond à l'ordre de l'harmonique sphérique qui décrit la dépendance angulaire de l'anisotropie locale de symétrie uniaxe ($l = 2$) ou cubique ($l = 4$). On pose $n = l(l+1)/2$. Cette théorie mime bien le comportement de l'anisotropie magnétique en température des matériaux magnétiques oxydes et à base de terre rare. De plus, ce modèle permet d'expliquer le fait que la décroissance de l'anisotropie magnétique soit plus rapide que celle de l'aimantation.

2.5. COMPORTEMENT EN TEMPÉRATURE DE L'AIMANTATION ET DE L'ANISOTROPIE DES MICROFILS NANOCRISTALLISÉS

Approximations à à	Loi de puissance	$l = 2$	$l = 4$
Basse température	$\sim m^{l(1+2)/2}$	m^3	m^{10}
Haute température	$\sim m^l$	m^2	m^4

TABLE 2.2 – Dépendance en loi de puissance de l'aimantation dans l'approximation d'un seul ion pour un système uniaxe ($l = 2$) et cubique ($l = 4$), à basse et à haute température [45].

De manière phénoménologique, un bon accord entre le comportement en température de l'anisotropie magnétique et de l'aimantation à saturation est trouvée lorsque n vaut 2 pour $T_a = 830$ et 850 K et lorsque n est égal à 3 pour $T_a = 870$ K. Ces résultats semblent suggérer une anisotropie de symétrie uniaxe pour les microfils nanocristallisés.

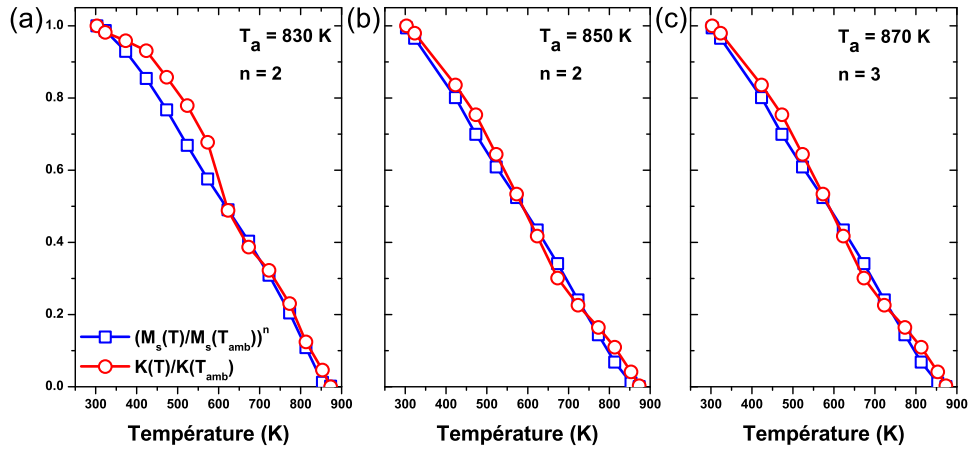


FIGURE 2.14 – Corrélation en température entre l'anisotropie magnétique expérimentale et l'aimantation à saturation pour l'alliage A_{Fe} .

2.6 Conclusion

Ce chapitre a été l'occasion de présenter le dispositif de tirage des microfils gainés de verre ainsi que la production en interne des alliages précurseurs par fusion au creuset froid. En comparaison des alliages à base cobalt, les alliages à base fer démontrent d'excellentes propriétés magnétiques, suite à la formation d'une phase nanocristallisée pour $T > T_x$. De plus, il en résulte une augmentation significative de la température de Curie et donc une meilleure tenue en température. Ces matériaux mettent en lumière l'influence de l'ordre structural sur les propriétés magnétiques résultantes.

Une attention particulière a été portée sur le comportement en température de l'aimantation à saturation et de la densité d'anisotropie magnétique pour l'alliage Finemet (A_{Fe}) :

- une théorie du champ moyen avec un paramètre de désordre a permis de modéliser les courbes d'aimantation en température. Comme attendu, le paramètre de désordre augmente en corrélation avec la fraction volumique en amorphe.
- la dépendance en température de l'anisotropie magnétique a été reportée. L'existence d'une anisotropie K_r non-négligeable semble mettre en défaut le modèle de contraintes utilisé ou au contraire révèle la présence d'une anisotropie induite lors du traitement thermique.
- la corrélation entre l'aimantation et l'anisotropie magnétique à l'aide la théorie de Callen et Callen semble montrer l'existence d'une anisotropie magnétique de symétrie uniaxe pour les microfils nanocristallisés à base fer.

La modélisation de l'anisotropie magnétique pourrait être affinée à l'aide d'une analyse structurale en température et de la connaissance du comportement en température du coefficient de magnétostriction. En complément, une étude en température des propriétés magnétiques de l'alliage A_{FeCo} serait intéressante à mener, en comparaison de l'alliage A_{Fe} .

Chapitre 3

Influence de la composition : exemple des couches minces ferromagnétiques amorphes en CoNb et CoZr

Sommaire

3.1	Élaboration par pulvérisation cathodique assistée magnétron	60
3.2	Caractérisations structurales	70
3.3	Influence de la composition sur les propriétés magnétiques	83
3.4	Réorientation de l'anisotropie magnétique	95
3.5	Conclusion	106

Ce chapitre a pour objet d'introduire le procédé de pulvérisation cathodique assistée magnétron au déroulé, qui est employé pour l'élaboration de couches minces magnétiques douces et amorphes. Les compositions retenues pour l'obtention de telles propriétés magnétiques sont issues de la famille MT-M combinant un métal de transition magnétique (Co) avec un métal de transition non-magnétique (Nb, Zr), qui joue le rôle d'amorphisant. Au cours de ce chapitre est présentée l'influence de la composition sur les propriétés structurales et magnétiques des alliages binaires $\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$ et $\text{Co}_{100-y}\text{Zr}_y$ ($5 < x, y < 20$ at.%). De part sa grande sensibilité à la composition, l'aptitude des couches minces à la réorientation de l'axe d'anisotropie magnétique est également reportée et discutée.

3.1 Élaboration par pulvérisation cathodique assistée magnétron

3.1.1 Pulvérisation cathodique

En 1852, Grove a établi une décharge électrique entre deux électrodes conductrices placées dans une enceinte sous pression réduite en gaz inerte [56], qui a conduit, à sa surprise, à la formation au niveau de l'anode d'une fine couche métallique de composition équivalente à celle de la cathode. En raison de la faible durée de vie des tubes à gaz, le phénomène de pulvérisation cathodique n'a été utilisé intensivement qu'à partir des années 70 pour l'élaboration de couches minces.

Le matériau cible à déposer est fixé sur une électrode refroidie correspondant à la cathode, portée à la tension négative de plusieurs centaines de volt. En vis-à-vis est placée l'anode : elle est reliée à la masse et fait couramment office de porte-substrat. La différence de potentiel entre les deux électrodes crée un champ électrique donnant lieu à l'ionisation du gaz résiduel dont la pression est de 0.1 Pa dans l'enceinte (cf Figure 3.1). Le plasma généré se compose d'ions chargés positivement, d'électrons et de particules de gaz neutres. Lors du processus de pulvérisation, les atomes de la cible sont arrachés sous l'impact des ions incidents (Ar^+) par transfert de quantité de mouvement et se condensent sur le substrat. Pour cette raison, la pulvérisation cathodique (PVD) est qualifiée de technique de dépôt « mécanique », en opposition au dépôt chimique en phase vapeur (CVD). La décharge est auto-entretenu par les électrons secondaires éjectés de la cible. Comme la cible s'échauffe sous l'effet du bombardement ionique continu, il est nécessaire de la refroidir afin de conserver un rendement de pulvérisation constant.

La pulvérisation cathodique assistée magnétron consiste à adjoindre un champ magnétique transverse au champ électrique déjà présent pour une pulvérisation diode classique dans le but d'accroître l'efficacité de pulvérisation. La présence du champ magnétron impose aux électrons de suivre des trajectoires hélicoïdales autour des lignes de champ magnétique. L'augmentation de la distance parcourue par les électrons secondaires se traduit par un accroissement de la probabilité de ioniser le gaz plasmagène à proximité de la cathode. L'intérêt majeur de la pulvérisation cathodique assistée magnétron est de déposer à basse pression des couches minces denses.

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

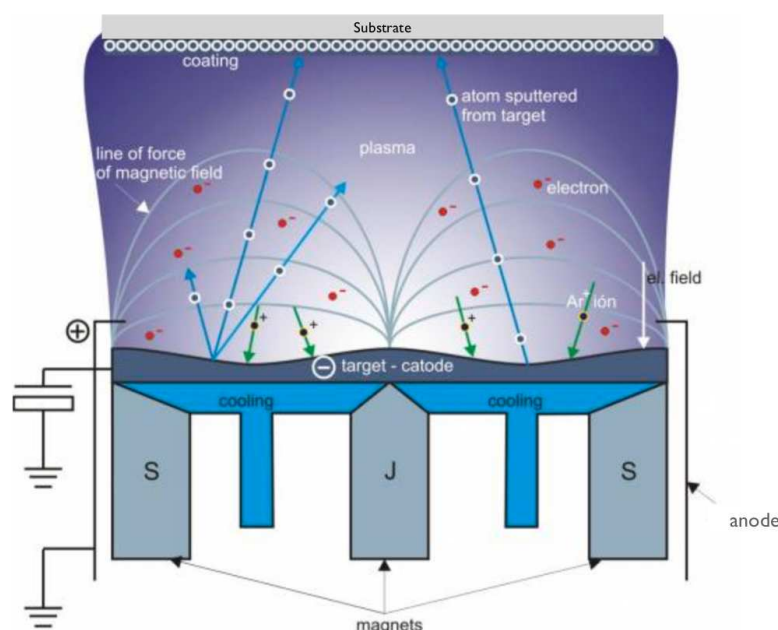


FIGURE 3.1 – **Pulvérisation cathodique assistée magnétron.** Les atomes de la cible sont arrachés par les ions positifs bombardants et vont se condenser à la surface du substrat. La présence du champ magnétron permet d'augmenter l'efficacité de pulvérisation.

Outre l'intérêt d'augmenter les vitesses de dépôt, la technique de pulvérisation cathodique assistée magnétron oriente l'aimantation lors de la croissance des couches minces magnétiques amorphes. Le champ magnétron résiduel a pour effet d'induire une anisotropie uniaxe dans le plan de la couche. L'axe de facile aimantation est défini dans le sens de défilement du film pour un dépôt au déroulé, soit perpendiculairement à la grande longueur de la cathode. Cette propriété n'est conservée qu'en l'absence de toutes autres sources d'anisotropie aussi bien magnéto-cristalline que magnéto-élastique.

Le dépôt d'une couche mince par pulvérisation cathodique est fréquemment réalisé sur un porte-substrat fixe placé au niveau de l'anode. De ce fait, les surfaces déposées s'avèrent assez faibles et sont tributaires des dimensions de la cathode employée. Le dépôt au déroulé permet de remédier à cette limite géométrique en assurant le défilement du substrat au-dessus de la cathode (cf Figure 3.2). Dans

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

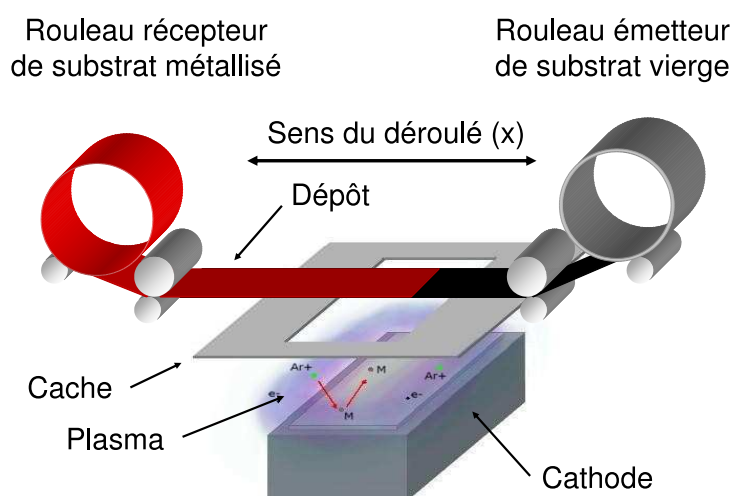


FIGURE 3.2 – **Dépôt par pulvérisation cathodique au déroulé.** Le défilement du substrat polymère au-dessus de la cathode est assuré par le biais de rouleaux émetteur-récepteur.

cette configuration, les films métalliques sont déposés sur des substrats polymères de type polyimide (Kapton) ou polyester saturé PET (Mylar). Nous disposons de deux types de dérouleur au laboratoire :

- le premier se compose d'un tambour central contre lequel est plaqué et maintenu sous tension le substrat polymère. Avec notre dispositif, la largeur maximale du substrat polymère est de 600 mm. Le refroidissement du tambour est assuré par une circulation d'eau froide dans un serpentin, soudé à la paroi intérieure de ce dernier. De chaque côté du tambour sont situés le rouleau émetteur de substrat vierge et le rouleau récepteur du film métallisé. Leur vitesse angulaire est contrôlée par deux moteurs.
- le deuxième est de type planaire et se compose de la même manière d'un rouleau émetteur et d'un rouleau récepteur. Avec ce dispositif, le film est non refroidi pendant le dépôt et la tension mécanique est faible et non contrôlée.

Il est à noter que le sens du champ magnétron perçu par la couche magnétique s'inverse à mi-largeur de la cathode lors du défilement du film. La direction du champ magnétron reste inchangée tout au long du dépôt mais son intensité varie fortement en fonction de la distance cible-substrat. Cependant le fait d'effectuer un dépôt sur un tambour cylindrique induit, par simple effet géométrique, une dispersion des propriétés mécaniques et magnétiques qui sera détaillée au cours du Chapitre IV.

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

Nous disposons au laboratoire de deux bâtis de production de grandes dimensions pouvant atteindre un vide de l'ordre de 10^{-5} Pa. Le volume disponible ($V > 0.8 \text{ m}^3$) permet d'introduire le dérouleur de type tambour et la cathode Loop de dimensions $635 \times 127 \text{ mm}^2$ (cf Figure 3.4). La cathode constituée d'aimant de type Samarium-Cobalt induit un champ magnétique élevé (3 kOe) et permet l'élaboration de couches minces à base d'alliage magnétique avec une forte aimantation à saturation ($> 10 \text{ kG}$).

Les propriétés structurales, mécaniques et magnétiques des couches minces élaborées dépendent des paramètres de pulvérisation :

- la puissance surfacique \mathbf{W}_s répartie sur toute la surface de la cible. L'intensité du courant et la tension sont appliquées de manière à garder constante la puissance surfacique.
- la pression du gaz plasmagène (argon) notée \mathbf{P}_{gaz} qui règne dans l'enceinte de dépôt, soit $\approx 0.1 \text{ Pa}$.
- la distance cible-substrat \mathbf{d}_{c-s} . L'énergie des atomes pulvérisés décroît fortement avec la distance en raison de l'augmentation du nombre de collisions avec les particules du plasma [57].
- la pression résiduelle dans l'enceinte avant dépôt \mathbf{P}_r , soit 10^{-5} Pa .

3.1.2 Matériaux magnétiques doux déposés par PVD

L'augmentation des fréquences de fonctionnement dans la gamme du GHz nécessite l'emploi de matériaux magnétiques doux combinant une forte aimantation à saturation, un faible champ coercitif et des niveaux de perméabilité magnétique élevés. On peut recenser trois grandes familles d'alliage répondant à ces exigences :

- **les alliages métalliques polycristallins.** Les Permalloys à base de fer et de nickel présentent une anisotropie magnéto-cristalline nulle pour la composition $\text{Fe}_{25}\text{Ni}_{75}$ et un coefficient de magnétostriction nul pour $\text{Fe}_{17}\text{Ni}_{83}$. Ainsi il est possible de contrôler l'intensité de l'anisotropie magnétique via la composition. Leur faible résistivité constitue un point négatif pour les applications hyperfréquences de couches minces d'épaisseur micronique.
- **les alliages métalliques amorphes.** Ces alliages ne présentent pas d'anisotropie magnéto-cristalline et possèdent un faible champ coercitif en raison de l'absence de défauts (les défauts servent de points d'ancrage aux parois de domaine magnétique). L'état amorphe se forme à partir d'une certaine concen-

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

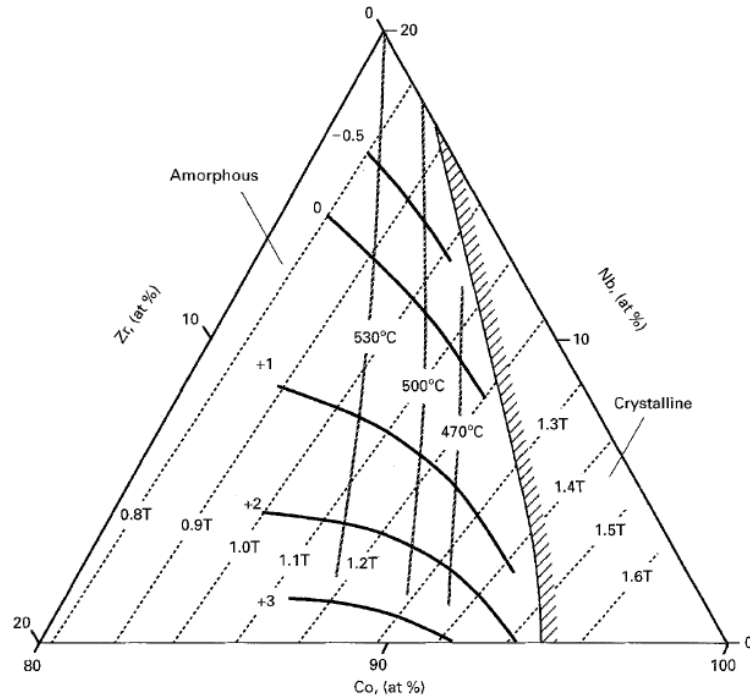


FIGURE 3.3 – **Diagramme ternaire CoNbZr d'après Otomo [62].** La gamme de formation de la phase amorphe ainsi que la dépendance en fonction de la composition de l'aimantation à saturation, de la température de cristallisation et du coefficient de magnétostriction sont représentées sur ce diagramme.

tration seuil par addition d'un élément amorphisant qui a pour effet d'induire du désordre.

▷ Les alliages **MT-Md** sont la combinaison d'un élément de transition magnétique MT (Fe, Co, Ni) et d'un métalloïde Md (B, Si, P, C) afin de former une solution solide où l'élément Md occupe un site interstitiel.

▷ Les alliages **MT-M** constituent une solution solide où le métal de transition non-magnétique M (Ti, Nb, Ta, Zr) occupe un site par substitution.

- les **alliages nanocristallins** tels que le FeTaN, FeCoAlO et notamment les alliages FeCoC qui font l'objet de nouvelles études au sein du laboratoire [58, 59, 60, 61]. Ces nouvelles compositions possèdent d'excellentes propriétés magnétiques douces avec notamment une aimantation à saturation élevée et une forte résistivité.

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

Les alliages polycristallins (Permalloy) et les alliages métalliques amorphes (Co-FeB, CoNbZr) ont déjà été étudiés au laboratoire, notamment au cours des thèses de Queste [63] et Pain [9]. Les travaux de Queste ont permis de mettre en exergue l'influence des paramètres de pulvérisation, de l'épaisseur et des effets de forme sur les propriétés magnétiques statiques et dynamiques. En conclusion de ses travaux, l'alliage CoNbZr constitue un excellent matériau pour des applications hyperfréquences en raison de sa résistivité et de son aimantation élevées. Les travaux de Pain ont porté sur la modélisation des propriétés magnétiques hyperfréquences de couches minces douces dans l'approximation du macrospin, du double gyro ou avec une fluctuation d'échange. L'étude de la réorientation de l'anisotropie magnétique par le biais d'un traitement thermomagnétique a révélé l'existence d'une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur de la couche.

De part la corrélation entre l'anisotropie magnétique et l'ordre atomique local [64, 65], mes travaux de thèse portent sur l'étude des propriétés magnétiques et structurales en fonction de la composition. Bien que les alliages ternaires CoNbZr présentent des propriétés magnétiques plus intéressantes que celles des binaires, l'étude structurale des alliages amorphes nécessite de limiter le nombre d'élément à son strict minimum pour en faciliter l'interprétation. Pour cette raison ont été étudiés les alliages binaires de composition $\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$ et $\text{Co}_{100-y}\text{Zr}_y$ avec $5 < x, y < 20$ at.%. L'épaisseur des couches minces doit être comprise entre 200 nm et 3 μm . Au delà de cette épaisseur, l'effet de peau devient tel que le matériau perd tout intérêt pour des applications hyperfréquences. Les teneurs minimales pour obtenir l'état amorphe des alliages binaires par pulvérisation cathodique ont été référencées par Kazama [66], soit 5 at.% pour le Zr et 7 at.% pour le Nb. Le rayon atomique du Zr ($r_{\text{Zr}} = 1.55 \text{ \AA}$) est légèrement supérieur à celui du Nb ($r_{\text{Nb}} = 1.45 \text{ \AA}$) et par conséquent, le zirconium induit un encombrement stérique plus important pour un même taux. Ces alliages ont pour intérêt de présenter des niveaux de perméabilité élevés et une forte résistivité ($\rho \approx 100 - 150 \mu\Omega.\text{cm}$). La caractérisation de leurs propriétés magnétiques tant en statique qu'en dynamique a fait l'objet de nombreux travaux [67, 68, 69, 70, 71, 72]. Otomo a notamment publié à la fin des années 90 le diagramme ternaire de l'alliage $\text{Co}_{100-x-y}\text{Nb}_x\text{Zr}_y$ avec x et $y < 20$ (cf Figure 3.3) [62]. Ce diagramme référence le taux minimal en amorphisant nécessaire pour obtenir l'état amorphe ainsi que l'aimantation à saturation et la magnéto-striction en fonction de la composition. Ce diagramme ternaire fournit des tendances sur le

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

Alliage binaire	Composition théorique (at.%)	Analyse ICP-AES (at.%)
$\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$	$\text{Co}_{92}\text{Nb}_8$	$\text{Co}_{91.9}\text{Nb}_{8.1}$
	$\text{Co}_{90}\text{Nb}_{10}$	$\text{Co}_{89.7}\text{Nb}_{10.3}$
	$\text{Co}_{87}\text{Nb}_{13}$	$\text{Co}_{86.6}\text{Nb}_{13.4}$
	$\text{Co}_{85}\text{Nb}_{15}$	$\text{Co}_{84.9}\text{Nb}_{15.1}$
	$\text{Co}_{80}\text{Nb}_{20}$	$\text{Co}_{81.7}\text{Nb}_{18.3}$
$\text{Co}_{100-y}\text{Zr}_y$	$\text{Co}_{95}\text{Zr}_5$	$\text{Co}_{95.4}\text{Zr}_{4.6}$
	$\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$	$\text{Co}_{89.7}\text{Zr}_{10.3}$
	$\text{Co}_{85}\text{Zr}_{15}$	$\text{Co}_{84.9}\text{Zr}_{15.1}$
	$\text{Co}_{80}\text{Zr}_{20}$	$\text{Co}_{79.3}\text{Zr}_{20.7}$

TABLE 3.1 – Vérification de la composition théorique des cibles par analyse ICP-AES.

propriétés des alliages considérés mais ne fournit pas d'indications quantitatives. En effet, certaines propriétés varient d'un bâti à un autre et selon les conditions de dépôt. Par exemple, des couches minces amorphes $\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$ sont obtenues pour $x < 15$ [66, 73], contrairement aux informations indiquées sur le diagramme. C'est pourquoi il est nécessaire de mener ses propres caractérisations pour des paramètres de pulvérisation donnés. De plus, les travaux liés à la caractérisation de l'ordre local d'une couche mince amorphe et l'aptitude à la réorientation de l'anisotropie magnétique dans de telles couches se font plus rares ou sont même parfois inexistantes pour l'alliage CoNb.

3.1.3 Faisabilité de dépôts avec un gradient de composition dans la largeur du film

Dans le but d'étudier l'influence de la composition sur les propriétés structurales et magnétiques, des cibles composites constituées de «briquettes» de différentes compositions ont été utilisées à la place d'une cible d'une même et unique composition (cf Figure 3.4). Par conséquent, nous obtenons un gradient de composition dans la largeur du film déposé. L'intérêt de cette approche est de proposer :

- **un gain de temps.** En un seul dépôt, une large gamme de compositions est élaborée.

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

- **une réduction des coûts.** Il n'est plus nécessaire de commander une cible complète (≈ 8 k€ pour une cible de même composition).
- **une flexibilité.** En associant différents morceaux de cible en CoNb et CoZr, il est possible d'explorer de nouvelles compositions ternaires.

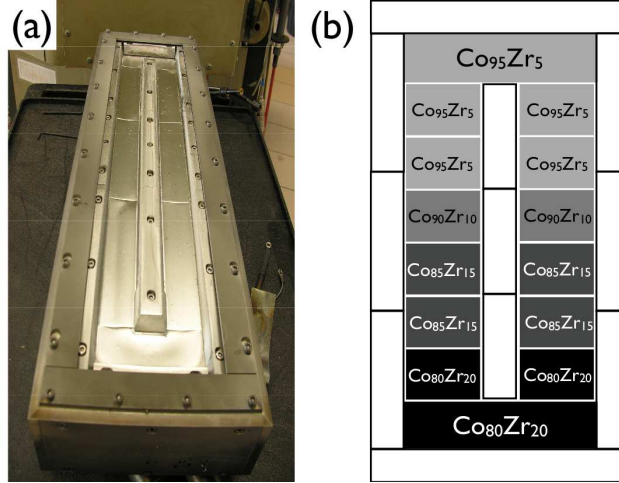


FIGURE 3.4 – Cathode de type Loop de dimensions 635×127 mm². Photographie d'une cathode Loop destinée à être placée dans l'enceinte du bâti (a). Schéma d'une cible composite en CoZr (gris foncé) et des pièces polaires (gris clair) (b).

Le panel de cibles de composition $\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$ et $\text{Co}_{100-y}\text{Zr}_y$ varie respectivement de $8 < x < 20$ et $5 < y < 20$. Les cibles polycristallines sont fabriquées par fusion sous vide et ne présentent ni porosité ni fissure. Les résultats d'analyse de composition par ICP-AES¹ des briquettes utilisées sont récapitulés dans la Table 3.1. Les compositions identifiées sont voisines des compositions théoriques à ± 0.7 at.% et aucune trace d'impureté n'a été détectée. Les dépôts sont élaborés selon deux valeurs de pression en gaz plasmagène : $P_{\text{gaz}} = 0.2$ et 0.9 Pa, et deux valeurs de puissance surfacique : $W_s = 6.5$ et 13.8 W/cm².

Une première série de dépôts au déroulé de composition $\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$ et $\text{Co}_{100-y}\text{Zr}_y$ a été réalisée afin d'évaluer la faisabilité de l'élaboration de telles couches et de s'assurer de la stabilité du plasma. Avant de caractériser les propriétés magnétiques des films déposés, des prélèvements d'échantillon ont été effectués dans la largeur du film afin de quantifier le gradient de composition obtenu par rapport au montage

1. Inductively Coupled Plasma Atomic Emission Spectroscopy

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

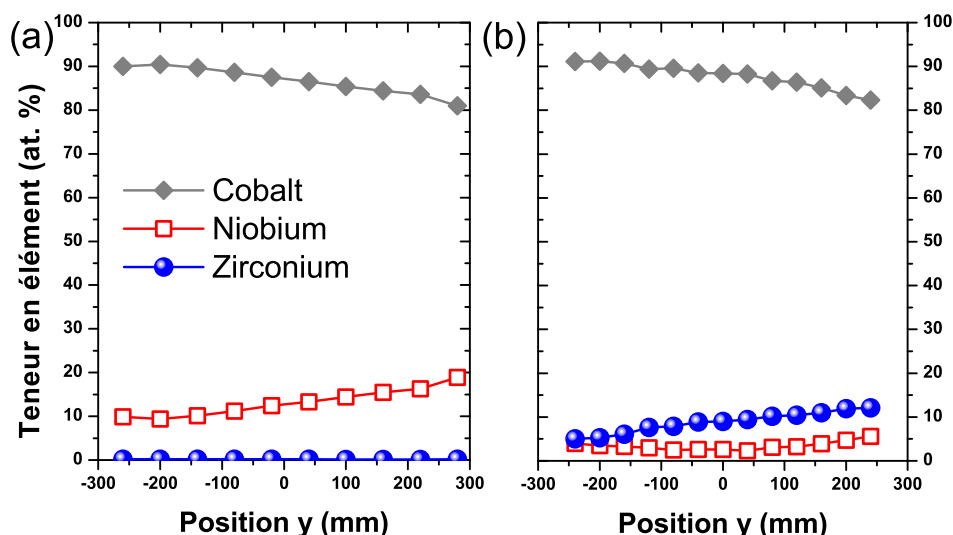


FIGURE 3.5 – **Gradient de composition dans la largeur du film.** Variations de composition analysées par ICP-AES pour les dépôts en CoNb (a) et en CoZr (b). Noter la forte proportion en Nb pour le dépôt réalisé avec une cible d’alliage CoZr.

de la cible opéré. Les analyses de composition ont été effectuées par ICP-AES (cf Annexe B) et sont récapitulées sur la Figure 3.5. Comme attendu, les dépôts CoNb et CoZr présentent un gradient de composition dans la largeur du film compris entre $9 < x < 18$ et $5 < y < 13$. Le gradient de composition varie faiblement dans la largeur de dépôt (< 0.15 at.%/cm) de telle manière qu’un échantillon de dimensions caractéristiques 9×9 mm² est homogène en composition.

Cependant le dépôt CoZr se distingue par une forte proportion en Nb ($1 < x < 5$) sur toute la largeur du dépôt alors que seules des briquettes d’alliage CoZr ont été utilisées lors du montage de la cible. La présence en forte proportion de niobium dans les films déposés ne peut être qualifiée de pollution résiduelle. Étant donné une contribution en niobium sur toute la largeur du dépôt, les pièces polaires positionnées le long de la cible ont été supposées comme source de niobium. Leur composition initiale est en cobalt pur et leur rôle est d’orienter les lignes de champ magnétique parallèlement à la cible dans le but de mieux confiner le plasma. Les pièces polaires utilisées présentent à leur surface une fine sur-épaisseur de l’ordre

3.1. ÉLABORATION PAR PULVÉRISATION CATHODIQUE ASSISTÉE MAGNÉTRON

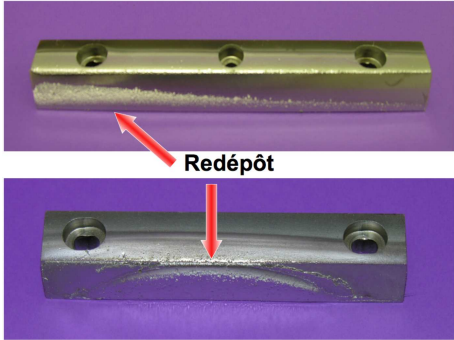


FIGURE 3.6 – Accumulation de matière au cours des précédents dépôts sur les pièces polaires.

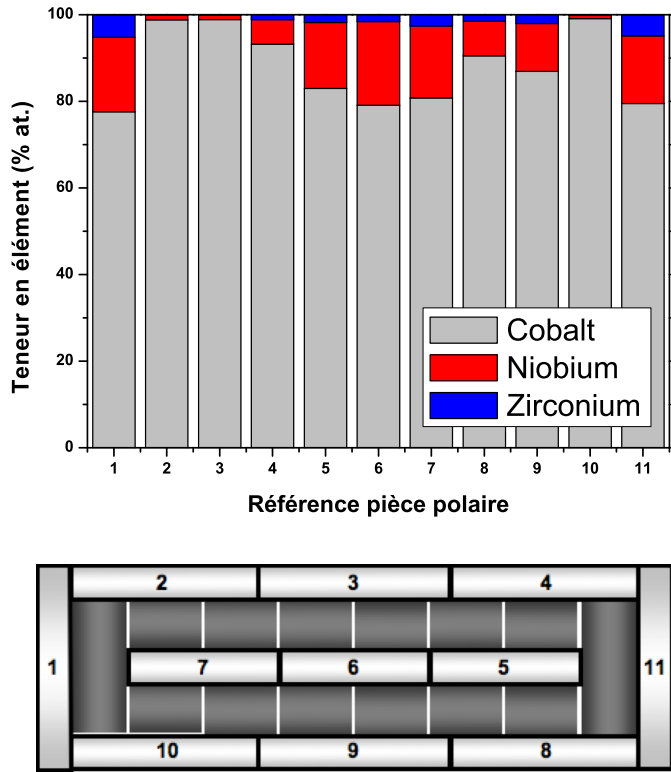


FIGURE 3.7 – Matière redéposée sur les pièces polaires placées aux extrémités (a) et le long de la cible (b).

de 0.5 mm, comme le montrent les photographies suivantes (cf Figure 3.6). Cette sur-épaisseur a pour origine le dépôt de matière provenant de cibles en CoNbZr ou en CoNb lors de précédents dépôts. Un usinage des pièces polaires a été effectué de manière à retirer le redépôt et à analyser la composition des copeaux résultants par ICP-AES. Sur la Figure 3.7, il est notable que la matière redéposée correspondant aux pièces polaires positionnées au centre et aux extrémités de la cible ont des teneurs en niobium élevées ($x \approx 20$) et faibles en zirconium ($y < 5$). Il s'avère que les pièces polaires sont une source de matière non-négligeable lors de la croissance de la couche mince. Pour cette raison, des jeux supplémentaires de pièces polaires en cobalt pur ont dû être approvisionnés : chaque jeu sera associé à une unique cible d'alliage CoNb ou CoZr.

Une fois l'apport en matière des pièces polaires cerné, des films avec un gradient de composition dans la largeur à partir d'une cible composite ont pu être déposés. Combiner des cibles binaires de différentes compositions offre de nouvelles opportunités d'élaboration de couches minces magnétiques aussi bien binaires que ternaires, et cela à moindre coût.

3.2 Caractérisations structurales

Au contraire des alliages cristallins qui présentent un réseau atomique périodique dans les trois directions de l'espace, les matériaux amorphes se distinguent par l'absence d'ordre atomique à longue portée. Cet état structural est à l'origine des excellentes propriétés magnétiques douces des alliages à base cobalt [24]. Les premiers modèles basés sur l'assemblage de motifs décrivant l'ordre local d'un amorphe ont été développés dans les années 60. Avec l'accroissement des puissances de calcul, la modélisation des verres métalliques par dynamique moléculaire a vu le jour à la fin des années 80.

En raison de la perte de périodicité, des techniques de caractérisation fine telles que la spectrométrie d'absorption des rayons-X de source synchrotron (EXAFS) sont requises pour définir précisément l'ordre à courte portée (1^{er} et 2^{ème} voisins) et l'ordre à moyenne portée des matériaux amorphes (3^{ème} au 6^{ème} voisins). La fonction d'interférence $S(q)$ extraite à partir des données EXAFS donne par transformée de Fourier (3.1) la fonction de corrélation de paire $g(r)$, qui constitue l'objet approprié

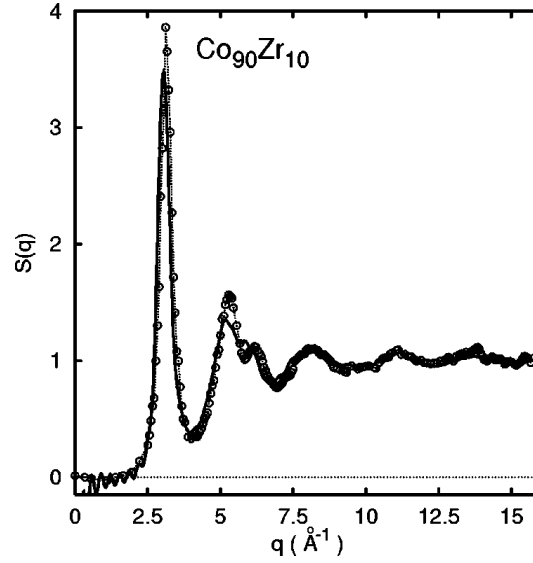


FIGURE 3.8 – **Fonction d'interférence expérimentale et calculée par dynamique moléculaire d'un ruban trempe sur roue de composition $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ [74, 75].** Le deuxième pic d'interférence montre une double bosse caractéristique des alliages métalliques amorphes.

pour caractériser l'ordre local chimique et topologique :

$$\begin{aligned} S(q) &= 1 + n_0 \int_0^\infty (g(r) - 1) \frac{\sin qr}{qr} 4\pi^2 dr \\ g(r) &= 1 + \frac{1}{8\pi^3 n_0} \int_0^\infty (S(q) - 1) \frac{\sin qr}{qr} 4\pi q^2 dq \end{aligned} \quad (3.1)$$

avec n_0 la densité du matériau considéré. En effet, l'ordre local des alliages métalliques amorphes est défini par l'ordre à courte portée d'origine chimique (Chemical Short Range Order : **C.S.R.O.**) et topologique (Topologic Short Range Order : **T.S.R.O.**). L'ordre chimique désigne la nature des plus proches voisins d'un atome considéré tandis que l'ordre topologique décrit la distribution dans l'espace des premiers voisins par rapport à un atome donné. La fonction de corrélation de paire renseigne sur les premiers voisins : la distance entre eux, leur nombre et leur nature. À titre d'exemple est représentée la fonction d'interférence d'un ruban de trempe sur roue de composition $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ (cf Figure 3.8) [74, 75]. La fonction d'interférence d'un métal amorphe a pour singularité une double bosse sur le 2^{ème} pic.

3.2.1 Modèles structuraux pour les alliages amorphes

Les modèles structuraux doivent reproduire deux caractéristiques expérimentales propres aux alliages métalliques amorphes :

- l'ordre atomique à courte portée (Short Range Order : **S.R.O.**) d'un matériau amorphe s'apparente à celui du matériau cristallin correspondant [76].
- une forte compacité ($c \approx 0.7$) qui tend vers celle des structures cristallines les plus compactes de type cubique à faces centrées (c.f.c.) ou hexagonale compacte (h.c.p.), de compacité $c = 0.74$ (cf Figure 3.9)

Pour ces raisons, les premiers modèles appelés **microcristallins** supposent une répartition aléatoire de nanocristallites afin de retranscrire la perte de périodicité à longue distance. Des cristallites de type h.c.p, c.f.c. et même orthorhombique ou quadratique ont été utilisées comme unité de base (cf Figure 3.9) [77, 78]. Ces modèles ont été abandonnés par la suite en raison de leur incapacité à reproduire la double bosse au niveau du second pic de la fonction d'interférence expérimentale des alliages amorphes [79].

Face à cet échec, Cohen a adapté aux matériaux amorphes le **modèle de sphères dures de Bernal** (Dense Random Packing Hard Sphere : **D.R.P.H.S.**) [80, 81, 82], mimant l'ordre structural d'un métal liquide. Ce modèle suppose un assemblage de sphères dures réparties aléatoirement dans les trois directions de l'espace. En s'inspirant de cette approche, le **modèle de Bennet** [83] et le **modèle polytétraédrique compact (P.T.C.)** [84] considèrent comme unité de base non plus une sphère dure mais un ensemble de trois sphères formant un triangle équilatéral. Les sphères viennent se greffer une à une soit sur le site tétraédrique le plus proche du noyau [83], soit de manière à minimiser le nombre de coordination [84]. Le modèle P.T.C. a pour avantage de former une structure polytétraédrique constituée essentiellement d'icosaèdres qui est le cluster d'énergie minimale. En effet, les résultats issus de la dynamique moléculaire montrent l'existence en forte proportion d'icosaèdres dans les alliages métalliques amorphes [85]. De plus, l'intérêt de cette approche est de reproduire la forte compacité des alliages amorphes et d'estimer des distances inter-atomiques entre premiers voisins cohérentes [78]. Cependant ces modèles ne tiennent pas compte de l'environnement chimique et ne reproduisent pas l'intensité des 2 et 3^{ème} pics de la fonction d'interférence. Par conséquent, ces modèles sont dans l'incapacité de décrire l'ordre à moyenne portée (Medium Range Order : **M.R.O.**) d'un matériau métallique amorphe. Considérer un assemblage de sphères

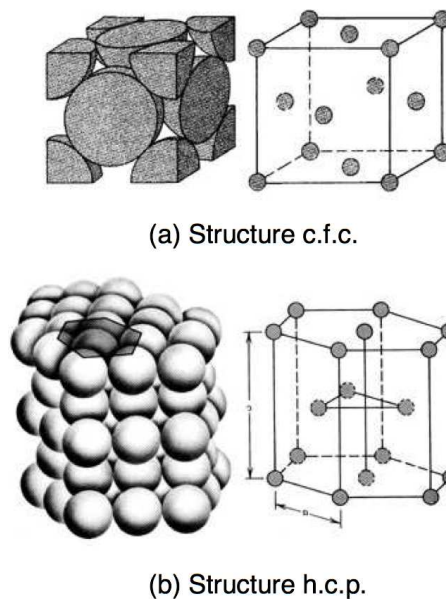


FIGURE 3.9 – Structure cristalline cubique à faces centrées c.f.c. (a) et hexagonale compacte h.c.p. (b).

dures ne permet de modéliser que les systèmes mono-atomiques ou les alliages avec des éléments de rayon atomique comparable pour lesquels l'ordre chimique est inexistant.

Reprenant l'approche des modèles microcristallins, **des modèles de motifs élémentaires** dans lesquels sont répartis des agrégats de type icosaédrique ou cubique ont été introduits (Dense Random Packing Hard Cluster : **D.R.P.H.C.**) [86]. Au contraire des modèles de sphères dures, ils tiennent compte de l'ordre local chimique (Chemical Short Range Order : **C.S.R.O.**) associé à la nature des plus proches voisins d'un atome considéré. Les clusters sont assemblés aléatoirement de manière à constituer une matrice atomique désordonnée. L'existence de zones de raccord entre les clusters engendre des fluctuations de l'ordre local, de la densité et de la composition. Ce modèle de construction a été utilisé avec succès pour des alliages amorphes de type $\text{Ni}_{77}\text{P}_{23}$ [87] ou à base fer [88] en considérant respectivement comme motif élémentaire un icosaèdre ou un germe cristallin cubique centré. **Ces modèles suggèrent l'existence d'une microstructure composée d'un ordre local à courte portée associé aux motifs existants en plus grand nombre dans la matrice désordonnée et d'un ordre local à moyenne portée pour des**

distances supérieures à la taille des motifs. L'ordre local à courte portée serait insensible à un traitement thermique dans la gamme de stabilité en température des motifs tandis que le recuit modifierait l'organisation des motifs. La prise en compte dans les modèles de la relaxation structurale occasionnée par un traitement thermique a pour effet d'augmenter la compacité. Ces modèles se limitent à décrire l'ordre à courte portée dans les alliages métalliques amorphes. Afin de mimer l'ordre à moyenne portée, Miracle a proposé un nouveau modèle (Random Packing Cluster : **R.D.C.**) où des clusters atomiques denses sont retenus comme motif structural local tout en tenant compte de la taille et de la nature chimique des éléments [89]. La structure étendue est formée en constituant un assemblage dense de clusters qui peuvent se déformer de manière à minimiser l'espace libre. Des clusters de type c.f.c. et h.c.p. sont considérés car ils facilitent la formation d'une structure désordonnée dense. Ainsi un arrangement de clusters c.f.c. reproduit l'ordre à moyenne portée jusqu'à une longueur de 1 nm, au-delà, les contraintes internes engendrent naturellement la perte d'ordre à longue portée. Ce modèle a pour intérêt de prédire le nombre et la nature des premiers voisins et de mimer l'ordre à moyenne portée.

Des modélisations par dynamique moléculaire permettent également de reproduire et même de prédire les propriétés structurales et mécaniques des alliages métalliques amorphes. Cette approche permet de tenir compte de l'environnement chimique et des mécanismes de relaxation atomique.

▷ **La dynamique moléculaire à potentiels effectifs (MD)** consiste à distribuer des atomes dans une boîte avec des conditions au bord périodique. Les potentiels de paire atomique à courte portée sont ajustés à partir des propriétés structurales et mécaniques des alliages cristallins associés. À partir de ces potentiels de paire et en résolvant les équations de mouvement, la structure atomique de l'alliage est reconstituée. La simulation de la trempe rapide nécessaire à la formation de la phase solide amorphe à partir de la phase liquide est réalisée par réduction de l'énergie cinétique à intervalle constant (\approx ps). Néanmoins, dans le cas de la MD, la vitesse de trempe simulée (10^{11} K/s) est bien supérieure à celle réalisée expérimentalement (10^6 K/s). Cette méthode a été utilisée avec succès pour mimer les fonctions de distribution de paire (PDF) d'alliages métalliques amorphes à base cobalt [75, 90].

▷ Dans le cas de **la dynamique moléculaire *ab-initio***, les forces interatomiques sont calculées exactement à partir des structures électroniques et ato-

3.2. CARACTÉRISATIONS STRUCTURALES

Modèle	Période	Structure	SRO	Compacité	CSRO	MRO
Cristallin	1960	Assemblée de cristallites	X	O	O	O
DRPHS	1980	Assemblée de sphères dures	X	X	O	O
DRPHC	1990	Assemblée de clusters solides	X	X	X	O
RDC	2000	Assemblée de clusters déformés	X	X	X	X
MD	1990	Potentiels interatomiques	X	X	X	X

TABLE 3.2 – **Récapitulatif des différents modèles structuraux des alliages métalliques amorphes.**

miques. Car et Parinello ont été les premiers à résoudre simultanément les équations de mouvement en tenant compte de la structure atomique et électronique [91]. La limite de cette méthode est la taille de la boîte qui ne contient qu’une centaine d’atomes. Sheng *et al* a notamment montré le bon accord entre les PDF expérimentales d’alliages métalliques amorphes et celles calculées par *ab-initio* [92]. Les résultats de la modélisation révèlent l’existence d’une grande variété de polyèdres.

En ce qui concerne les alliages étudiés dans ce mémoire, la fonction de distribution de paire de l’alliage $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ a été mesurée par Babanov [74] et modélisée par dynamique moléculaire par Rössler [75] mais aucune donnée expérimentale n’existe à notre connaissance pour l’alliage CoNb . Suran a également mené une analyse structurale par microscopie électronique à transmission des alliages $\text{Co}_{100-x-y}\text{M}_x\text{Zr}_y$ avec $\text{M} = \text{Zr}, \text{Nb}$ et Ti . Un modèle d’agrégats en considérant **trois clusters élémentaires** (Octaédrique, Trigonal et Icosaédrique) a été utilisé avec succès pour reproduire les fonctions d’interférence expérimentales [64].

Les modèles d’arrangement de clusters élémentaires déformés reproduisent l’ordre à courte et moyenne portées des alliages métalliques amorphes. De plus, la dynamique moléculaire reproduit finement l’ordre local atomique qui est composé d’une grande diversité de polyèdres. Une comparaison des différents modèles évoqués est reportée dans la Table 3.2.

3.2.2 Analyses structurales de l'état amorphe

Traditionnellement, la diffraction des rayons-X est un excellent outil pour décrire la structure cristalline d'un matériau. Dans les cas des matériaux amorphes, cette technique apporte une information sur l'état structural des couches minces élaborées (amorphe ou nanocristallin) qui est susceptible de varier en fonction des conditions de dépôts et du taux d'amorphisant. En l'absence d'ordre à longue portée, l'analyse de l'ordre local chimique et topologique des couches minces amorphes est rendue plus aisée par l'emploi de sources de haute énergie (neutron, rayonnement synchrotron).

3.2.2.1 Diffraction des rayons-X

La caractérisation structurale par diffraction des rayons-X de couches minces magnétiques CoNb et CoZr a été effectuée avec le diffractomètre D5000 de longueur d'onde $\lambda_{\text{Co}} = 1.6 \text{ \AA}$ (raie $K_{\alpha,1,2}$) en configuration $\theta - 2\theta$. La Figure 3.10 montre les diagrammes de diffraction rayons-X des couches minces de composition $\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$ avec $x = 11 \text{ at.}\%$ et $\text{Co}_{100-y}\text{Zr}_y$ avec $y = 7 \text{ et } 11 \text{ at.}\%$. Quelles que soient les conditions de dépôt et les composition étudiées, l'état structural des couches minces élaborées est amorphe.

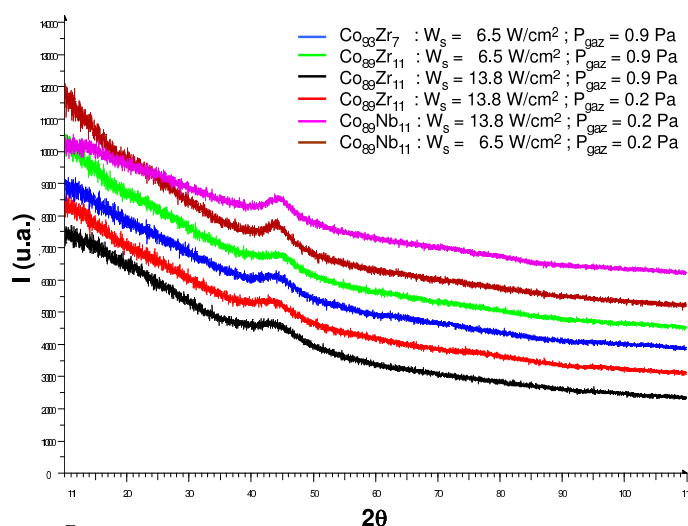


FIGURE 3.10 – Diagrammes de diffraction rayons-X de films CoNb et CoZr déposés pour différentes conditions de pulvérisation.

3.2. CARACTÉRISATIONS STRUCTURALES

3.2.2.2 Diffusion de neutrons

Afin de caractériser l'ordre local chimique et topologique, des expériences de diffusion de neutrons ont été réalisées sur le spectromètre 7C2 au Laboratoire Léon Brillouin (LLB) à Saclay. Ce diffractomètre deux axes sur faisceau chaud utilise une longueur d'onde $\lambda = 0.724 \text{ \AA}$. Le multidétecteur de type banane se compose de 640 cellules remplies de BF_3 (cf Figure 3.11). La gamme angulaire de détection est $1.25^\circ < 2\theta < 128^\circ$, soit $0.3 \text{ \AA}^{-1} < q < 20 \text{ \AA}^{-1}$. Les expériences ont été réalisées à température ambiante dans une enceinte sous vide primaire.

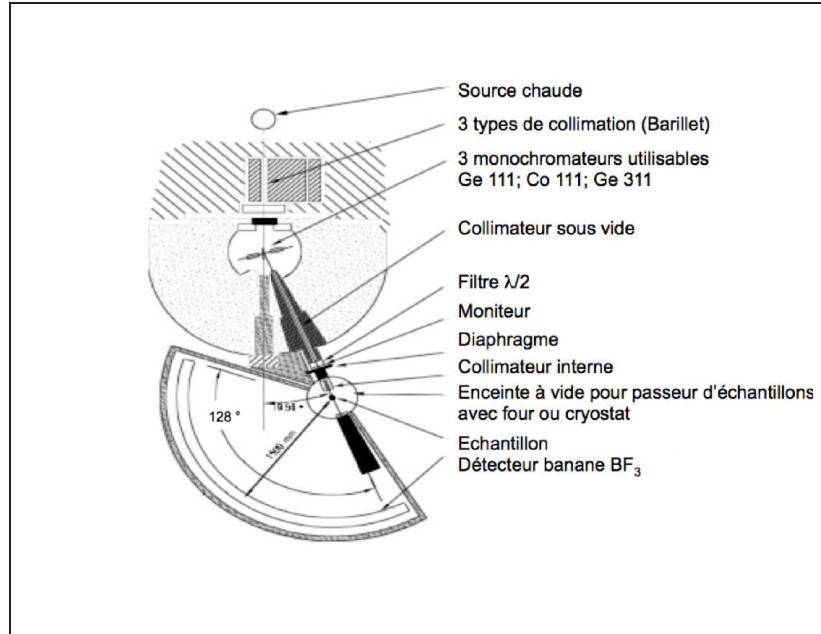


FIGURE 3.11 – Schéma du diffractomètre deux axes sur faisceau chaud 7C2.

Deux couches minces de composition $\text{Co}_{88}\text{Nb}_{12}$ et $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ ont été déposées au déroulé avec les paramètres de pulvérisation suivants : $W_s = 13.8 \text{ W/cm}^2$, $P_{\text{gaz}} = 0.2 \text{ Pa}$ et $d_{\text{c-s}} = 70 \text{ mm}$. La composition $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ a été retenue afin de comparer nos résultats avec la littérature [74, 75]. L'alliage $\text{Co}_{88}\text{Nb}_{12}$ a pour intérêt d'étudier l'influence de la nature de l'élément amorphisant sur l'ordre local. Le niobium cristallin est de symétrie c.f.c. tandis que le zirconium cristallin est de symétrie h.c.p., comme le cobalt à température ambiante. De part la nature neutrophage de l'hydrogène contenu dans le polymère, des dépôts d'épaisseur $t = 8.5 \text{ }\mu\text{m}$ ont été effectués sur des **feuilles de Vanadium** pur d'épaisseur $t_{\text{Va}} = 65 \text{ }\mu\text{m}$.

3.2. CARACTÉRISATIONS STRUCTURALES

Le traitement des données expérimentales a été réalisé avec le logiciel **GO** développé au LLB. Les données brutes sont corrigées de l'efficacité des cellules et normalisées afin d'obtenir l'intensité diffusée globale $I(q)$ en unité arbitraire. L'acquisition de diagrammes en l'absence d'échantillon et avec une feuille de Vanadium seule permet de soustraire des données mesurées le bruit de fond d'une part et la contribution du substrat d'autre part. Les corrections supplémentaires tiennent compte de :

- **la diffusion multiple.** La probabilité qu'un neutron diffusé subisse une seconde diffusion lors de la traversée de l'échantillon est non nulle, notamment pour les éléments avec une section efficace de diffusion élevée (ex : cobalt). La diffusion multiple d'un échantillon cylindrique a été calculée par Blech et Averbach [93]. Les principaux paramètres de correction sont la section efficace de diffusion et d'absorption (cf Table 3.3).
- **la diffusion inélastique.** Le facteur de structure correspond à la diffusion élastique des neutrons. Cependant les neutrons sont également diffusés de manière inélastique : ils perdent de l'énergie cinétique en raison des interactions avec les noyaux atomiques. La contribution inélastique a été estimée par Placzek [94]. Un des principaux paramètres de correction est la masse atomique (cf Table 3.3).

Élément	Masse atomique	Section efficace de diffusion σ_s (barn)	Section efficace d'absorption σ_a (barn)
Va	50.9	5.1	5.1
Co	58.9	5.6	37.2
Nb	92.9	6.2	1.1
Zr	89.9	5.1	5.1

TABLE 3.3 – **Paramètres de correction nécessaires pour le traitement des données neutroniques.** Les paramètres des alliages sont calculés selon une simple loi de dilution.

Les fonctions d'interférence $S(q)$ expérimentales de l'alliage $\text{Co}_{88}\text{Nb}_{12}$ et de l'alliage $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ sont représentées jusqu'à $q = 15 \text{ \AA}^{-1}$ sur la Figure 3.12. Sur la même figure est également tracée les fonctions d'interférences modélisées par dynamique moléculaire [90]. Notons que la position du premier pic correspondant à la paire Co-Co est assez proche $\approx 3 \text{ \AA}^{-1}$. Les contraintes internes dans la couche mince peuvent

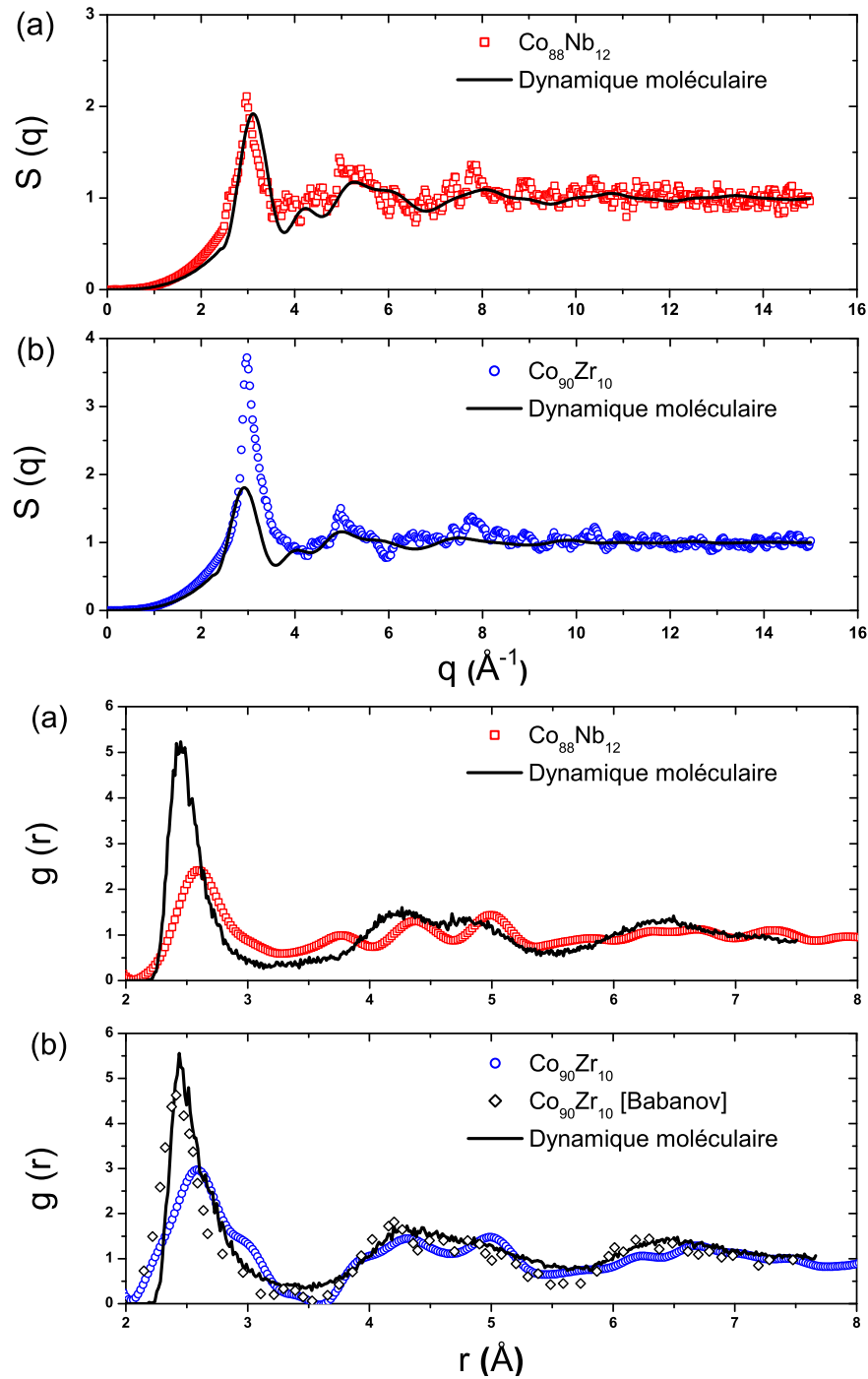


FIGURE 3.12 – Fonctions d’interférence $S(q)$ de couches minces métalliques amorphes sur substrat vanadium : $\text{Co}_{88}\text{Nb}_{12}$ (a) et $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ (b). En trait plein est représentée la fonction de corrélation de paire modélisée par dynamique moléculaire [90]. En complément sont tracés les points expérimentaux obtenus par Babanov pour un ruban de trempe sur roue de composition $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ [74].

3.2. CARACTÉRISATIONS STRUCTURALES

induire un allongement ou un rétrécissement de la distance entre premiers voisins et explique l'écart observé.

Corréler l'ordre à moyenne portée entre les fonctions d'interférence expérimentale et théorique est délicat en raison du peu de signal détecté. Le faible rapport d'épaisseur entre la couche magnétique et la feuille de vanadium ($t_{\text{Co-M}}/t_{\text{Va}} = 0.13$) engendre un signal bruité. L'idéal serait d'effectuer la mesure sur une couche mince seule ou sur des rubans de trempe sur roue qui sont exempts de substrat et dont l'épaisseur est supérieure à 20 μm . Les fonctions de corrélation de paire obtenues par transformée de Fourier des $S(q)$ sont représentées sur la Figure 3.12 (b). Les $g(r)$ théorique et expérimentale pour l'alliage $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ mesurée par Babanov sont également tracées à titre de comparaison [90]. La distance entre les premiers voisins mesurée expérimentalement ($r = 2.59 \text{ \AA}$) est légèrement supérieure à celle théorique et indiquée dans la littérature ($r = 2.45 \text{ \AA}$) [74, 75, 90].

Une étude préliminaire de l'ordre local des alliages binaires amorphes a été engagée par diffusion neutronique. L'exploitation des données expérimentales est délicate en raison de la faible quantité de matière sondée. Seule une information sur la distance entre les premiers voisins de la paire Co-Co est obtenue. Des couches minces autoportées comme les rubans de trempe sur roue seraient plus appropriées pour mener une telle étude avec cette technique.

3.2.2.3 Spectroscopie d'absorption rayons-X

La spectroscopie d'absorption fine (Extended X-Ray Absorption Fine Structure : EXAFS) permet d'évaluer les distances, le nombre et la nature des premiers et deuxièmes voisins. Cette technique repose sur le processus d'éjection d'un photoélectron, qui est utilisé comme sonde locale pour explorer l'environnement de l'atome absorbeur. Lors de la traversée d'un échantillon d'épaisseur t , les photons issus d'un faisceau de rayons-X de vecteur d'onde k_0 et d'intensité I_0 sont absorbés par les atomes par effet photoélectrique. L'intensité I à la sortie de l'échantillon est inférieure à I_0 selon :

$$I = I_0 \exp^{-\mu \cdot t}$$

3.2. CARACTÉRISATIONS STRUCTURALES

où μ est le coefficient d'absorption linéaire. Lorsque le photon incident d'énergie $E = h\nu$ possède une énergie supérieure à l'énergie de liaison E_l de l'électron d'une couche (K, L, ...), cet électron est expulsé dans le continuum avec une énergie $(E - E_l)$. Ce processus s'accompagne d'une émission d'électrons Auger ou de fluorescence.

Expérimentalement, on définit la modulation EXAFS comme étant $\chi(K) = (\mu - \mu_0)/\mu_0$ de manière à soustraire le bruit de fond μ_0 . Cette variation du coefficient d'absorption en fonction de l'énergie présente une première absorption au seuil K par exemple ($E_{\text{photon}} = E_l$), suivie d'oscillations dans la gamme d'énergie comprise entre 50 à 1000 eV. Ces oscillations résultent des interférences destructives et constructives entre l'onde du photoélectron incident et celle du photoélectron rétrodiffusé par les atomes voisins. Ces oscillations comportent l'information sur la structure locale.

Afin de déterminer l'ordre à courte portée des alliages binaires CoNb et CoZr, des expériences par spectroscopie d'absorption rayons-X ont été menées sur la ligne de faisceau BM29 de l'ESRF à Grenoble. La ligne de faisceau BM29 a pour intérêt d'offrir une large gamme d'énergie avec un flux rayons-X compris entre 4 et 74 keV, une haute résolution en énergie pour un rapport signal sur bruit inférieur à 7×10^4 . Les énergies d'absorption au seuil K sont $K_{\text{Co}} = 7.7089$ keV, $K_{\text{Zr}} = 17.9976$ keV et $K_{\text{Nb}} = 18.9856$ keV. La ligne de faisceau BM29 est dotée de deux détecteurs : le premier est constitué de photo-diodes qui compte les photons X en transmission et le deuxième est sensible au rayonnement émis lors du processus de désexcitation à la suite de l'interaction du photon X avec la matière (rayonnement par fluorescence). La détection du signal en transmission permet une mesure directe du signal EXAFS tout en bénéficiant d'un flux plus important. Le détecteur en transmission a été utilisé pour les mesures EXAFS au seuil du cobalt et le détecteur par fluorescence pour les mesures au seuil du niobium et du zirconium. Les couches minces ont été déposées au déroulé sur un **substrat polymère** à faible pression ($P_{\text{gaz}} = 0.2$ Pa) et à faible puissance ($W_s = 6.5$ W/cm²). Le traitement des données expérimentales est possible à partir des logiciels libres Athena et Artemis incorporant le code FEFF². Ce code calcule les fonctions de phase et d'amplitude nécessaires à la simulation du spectre EXAFS en supposant des ondes sphériques et un potentiel qui tient compte

2. <http://cars9.uchicago.edu/>

3.2. CARACTÉRISATIONS STRUCTURALES

des interactions du photoélectron avec les électrons environnants (effet à N corps).

La Figure 3.13 présente le signal EXAFS expérimental des alliages $\text{Co}_{89}\text{Zr}_{11}$ et $\text{Co}_{89}\text{Nb}_{11}$ aux différents seuils d'absorption des éléments. L'exploitation rigoureuse des données est en cours et requiert l'appui d'un expert dans ce domaine, au regard de la complexité de l'analyse. Néanmoins, comme attendu, le signal EXAFS diffère entre les alliages CoNb et CoZr . Les structures fines étendues des alliages $\text{Co}_{89}\text{Nb}_{11}$ et $\text{Co}_{84}\text{Nb}_{16}$ diffèrent uniquement en intensité et non en position.

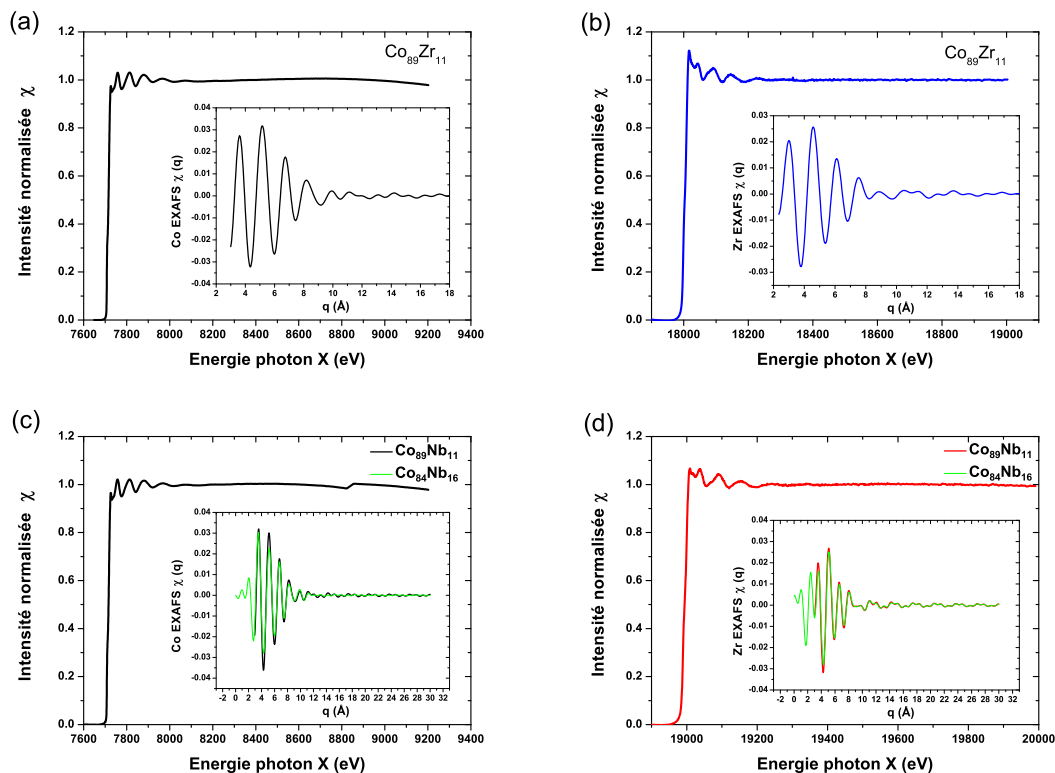


FIGURE 3.13 – Spectres d’absorption rayons-X aux différents seuils d’absorption des éléments Co (a et c), Zr (b) et Nb (d) constituant les couches minces de composition $\text{Co}_{89}\text{Zr}_{11}$ (a-b) et $\text{Co}_{89}\text{Nb}_{11}$ (c-d) déposées sur polymère. Les structures fines étendues sont représentées après normalisation au seuil d’absorption, correction du bruit de fond et conversion de l’énergie en vecteur d’onde q . Dans cette représentation sont également reportées les données expérimentales de l’alliage $\text{Co}_{84}\text{Nb}_{16}$.

3.3 Influence de la composition sur les propriétés magnétiques

Dans cette partie est étudiée l'influence de la composition via la teneur en amorphisant (Nb ou Zr) sur les propriétés magnétiques statiques et dynamiques des alliages amorphes à base cobalt pour différents paramètres de pulvérisation.

3.3.1 Propriétés magnétiques statiques

Les propriétés magnétiques telles que le champ d'anisotropie H_K , l'aimantation à saturation M_s et le champ coercitif H_c sont déterminées à partir du cycle d'hystérésis mesuré avec un magnétomètre à échantillon vibrant (cf Annexe B). À température ambiante, les couches minces de composition CoNb et CoZr présentent des cycles d'hystérésis typiques de films magnétiques doux avec une anisotropie uniaxe dans le plan (cf Figure 3.14). Selon l'axe x , les cycles d'hystérésis sont carrés avec un champ coercitif faible ($H_c < 2$ Oe) : l'axe facile de la couche est bien parallèle à la direction du champ magnétron appliqué durant le dépôt. Au contraire, les courbes d'aimantation mesurées selon l'axe y sont inclinées et correspondent à l'axe difficile de la couche. Les valeurs de champ d'anisotropie sont inférieures à 30 Oe. Ainsi les couches minces élaborées présentent des propriétés magnétiques douces. il est nécessaire de rappeler que le modèle de Stoner-Wohlfarth ne reproduit pas la courbe de facile aimantation et partiellement la courbe de difficile aimantation en raison de la courbure au voisinage de $H = H_K$ liée à la dispersion d'anisotropie [7].

3.3.1.1 Aimantation à saturation M_s

La Figure 3.15 représente la variation de l'aimantation à saturation et du moment magnétique moyen $\langle \mu \rangle$ en fonction de la teneur en amorphisant pour les alliages $\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$ ($9.7 < x < 17$ at.%) et $\text{Co}_{100-y}\text{Zr}_y$ ($5.3 < y < 12.6$ at.%). Pour des teneurs en élément non-magnétique inférieures à 17 at.%, l'aimantation à saturation décroît linéairement et indépendamment de la nature de l'élément de transition ajouté. La taille de l'élément non-magnétique n'influe pas sur la valeur de l'aimantation à saturation. L'élément ajouté a pour simple effet de diluer le moment magnétique du cobalt dans la solution solide formée. Il s'avère que pour des teneurs

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

plus élevées, cette décroissance perd sa linéarité et l'aimantation devient nulle pour $y > 40$ at.% [95].

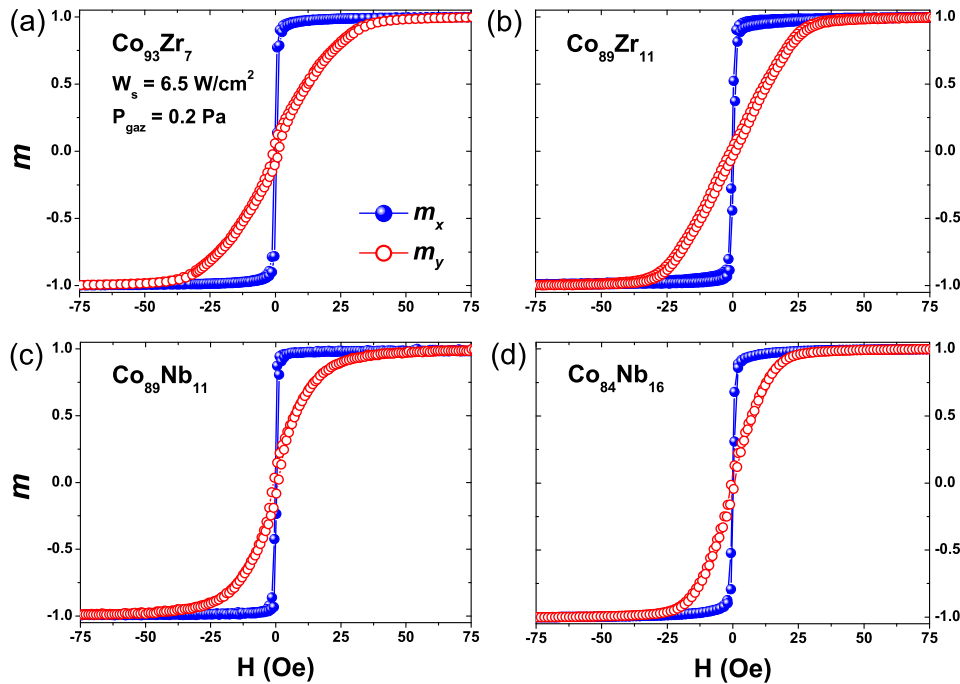


FIGURE 3.14 – Cycles d'hystérésis pour différentes compositions d'alliage binaire : CoZr (a-b) et CoNb (c-d).

L'aimantation de la couche mince résulte de la structure électronique de l'alliage formé. Un modèle d'états liés virtuels a été introduit pour calculer le moment magnétique moyen d'un alliage magnétique amorphe [96]. Ce modèle tient compte de l'environnement chimique au voisinage de l'atome de cobalt. Le moment magnétique moyen s'écrit :

$$\langle \mu \rangle = 1.7 - (10 - \Delta Z)[(100 - y)/y] \quad (3.2)$$

La valeur 1.7 correspond au moment magnétique du cobalt à 0 K et ΔZ est la différence de valence entre le soluté et le solvant. Dans le cas des alliages CoNb et CoZr, Naili a formulé une loi empirique à partir de la loi de (3.2) [64] :

$$\langle \mu \rangle = 1.65 - 5.4 \times x_{\text{Nb}} - 4.9 \times y_{\text{Zr}} \quad (3.3)$$

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

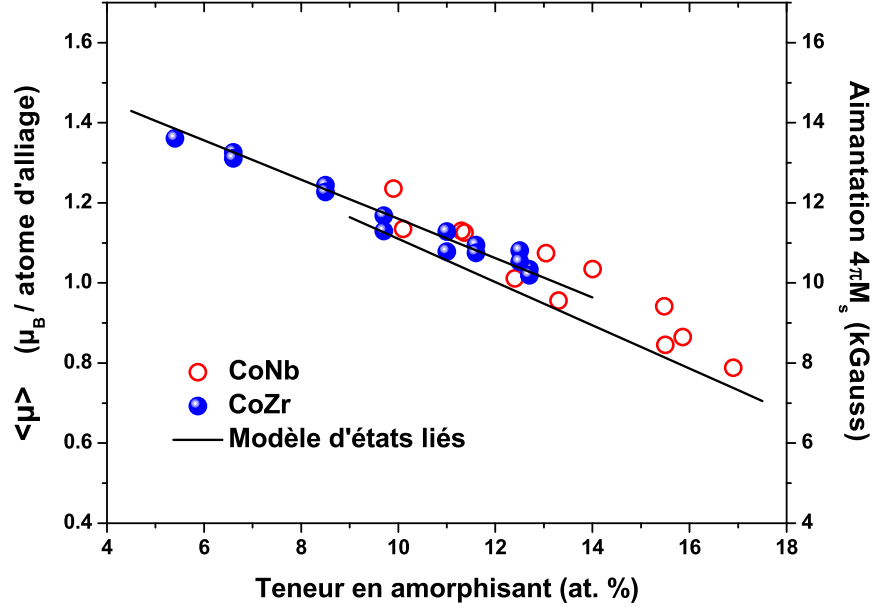


FIGURE 3.15 – Dépendance du moment magnétique moyen $\langle \mu \rangle$ et de l'aimantation à saturation en fonction du taux d'amorphisant. L'aimantation à saturation décroît linéairement pour des taux en amorphisant inférieurs à 20 at.%. Le modèle d'états liés virtuels donnent des valeurs du moment magnétique de l'alliage en accord avec les données expérimentales [64, 96].

Cette relation donne des résultats en accord avec les points expérimentaux, comme en témoigne la Figure 3.15.

3.3.1.2 Densité d'énergie d'anisotropie K

La variation de densité d'énergie d'anisotropie $K = (H_K \times \mu_0 M_s)/2$ est représentée sur la Figure 3.16 en fonction du taux d'amorphisant et pour différentes conditions d'élaboration. Quelle que soit la nature de l'élément ($M = \text{Nb}, \text{Zr}$), l'énergie d'anisotropie décroît avec la teneur en amorphisant, en accord avec les résultats de De Wit pour des alliages métalliques amorphes de type MT-M [97]. L'anisotropie des couches minces ($K = 1050 \text{ J/m}^3$) est équivalente pour $x = y = 11.5 \text{ at.}\%$ et pour des conditions de pulvérisation similaires. Sur la Figure 3.16 (b), on observe que l'énergie d'anisotropie est sensible à la pression de dépôt et non à la puissance surfacique.

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

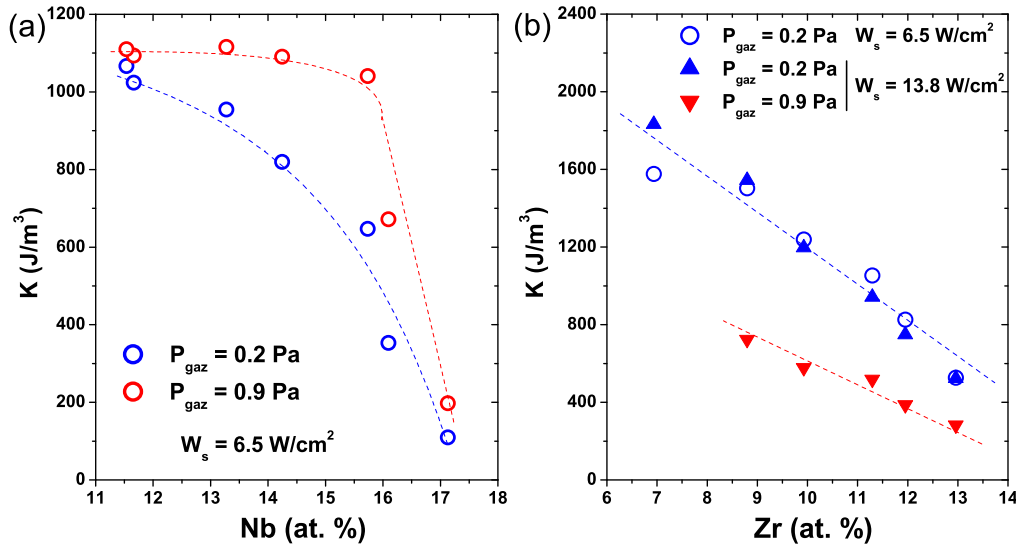


FIGURE 3.16 – Dépendance de la densité d'énergie d'anisotropie en fonction du taux d'amorphisant : alliage CoNb (a) et alliage CoZr (b).

3.3.1.3 Coefficient de magnétostriction à saturation λ_s

Il est important d'estimer la valeur et le signe du coefficient de magnétostriction à saturation de l'alliage afin d'évaluer la robustesse des propriétés magnétiques aux contraintes extérieures. La mesure du coefficient de magnétostriction est réalisée avec le dispositif de mesure spire sous contrainte (cf Annexe B). La variation du coefficient de magnétostriction en fonction du taux d'amorphisant (Nb ou Zr) est représentée sur la Figure 3.17. Au contraire de l'aimantation à saturation et de la résistivité, le coefficient de magnétostriction dépend fortement du métal de transition non-magnétique ajouté. En effet, le signe et l'intensité de λ_s changent selon la nature de l'élément ajouté : λ_s est négatif pour l'alliage CoNb et λ_s est positif pour l'alliage CoZr (cf Figure 3.17). Rappelons que les alliages amorphes à base cobalt avec un métalloïde (B, Si) induit une magnétostriction strictement négative. Les valeurs du coefficient de magnétostriction mesurées sont supérieures à celles publiées dans d'autres travaux, et notamment ceux de Fujimori [98]. Pour expliquer cette

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

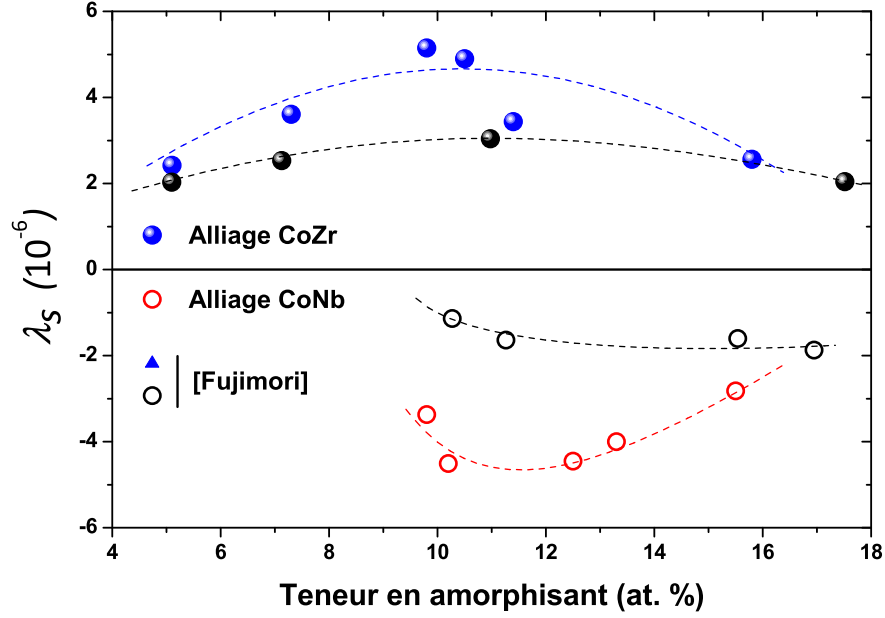


FIGURE 3.17 – Variation du coefficient de magnétostriction en fonction du taux d’amorphisant. Les valeurs de magnétostriction publiées par Fujimori [98] sont également reportées. Les tirets ne sont que des guides pour les yeux.

observation, les travaux de Hernando *et al* montrent via la courbure du cycle d’hystérésis à l’approche de la saturation, que λ_s dépend linéairement de la contrainte [99]. En effet, le coefficient de magnétostriction à saturation dépend des contraintes internes créées lors de la croissance de la couche : $\lambda_s = \lambda_s^0 - A\sigma_{\text{interne}}$ avec λ_s^0 le coefficient de magnétostriction intrinsèque. La mesure de λ_s^0 avec précision est uniquement possible sur des matériaux recuits à 670 K pour lesquels les contraintes sont totalement relaxées. Cette opération n’est pas réalisable dans notre cas puisque les dépôts sont réalisés sur un substrat polymère. La variation de contraintes internes selon les conditions de dépôt ou l’épaisseur de la couche mince explique de manière plausible les écarts de valeurs de magnétostriction données dans la littérature [62, 98].

Le coefficient de magnétostriction à saturation varie au 1^{er} ordre avec la composition et au 2nd ordre avec les conditions de dépôt, lesquelles modifient l’état de contraintes.

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

3.3.1.4 Recherche d'une composition zéro-magnétostrictive

Comme évoqué précédemment, les matériaux à base d'alliage binaire CoNb et CoZr présentent des coefficients de magnétostriction supérieurs à $|1 \times 10^{-6}|$. Cette propriété est parfois exploitée pour mesurer la contrainte exercée sur un matériau via des capteurs magnéto-strictifs [100]. En effet, l'application d'une contrainte sur un matériau magnéto-strictif se traduit par une variation du champ d'anisotropie et donc de la fréquence de résonance (cf Chapitre I). Dans le cadre de nos applications, une robustesse des propriétés magnétiques aux contraintes extérieures est recherchée.

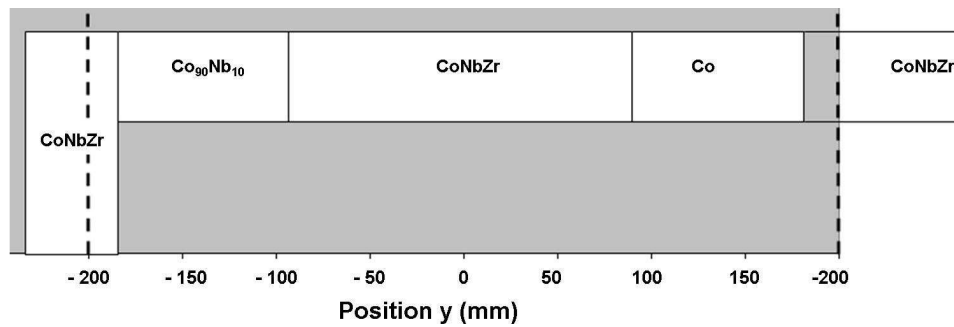


FIGURE 3.18 – **Schéma de la cible composite.** Les traits en pointillé indiquent la position du cache de largeur 400 mm par rapport à la cible. Seule la moitié de la cible Loop est représentée.

Les alliages CoNb et CoZr présentent des coefficients de magnétostriction de signe opposé (cf Figure 3.17). De ce fait, une composition zéro-magnétostrictive est obtenue par la formation d'un alliage ternaire $\text{Co}_{100-x-y}\text{Nb}_x\text{Zr}_y$ avec un rapport Nb/Zr approprié. Afin de déterminer la valeur de ce rapport, un dépôt au déroulé a été réalisé à partir d'une cible composite constituée de Co pur, de $\text{Co}_{90}\text{Zr}_{10}$ et de d'un alliage ternaire CoNbZr, comme le montre la Figure 3.18. Les conditions de dépôt sont $W_s = 13.8 \text{ W/cm}^2$, $P_{\text{gaz}} = 0.5 \text{ Pa}$ et $d_{c-s} = 75 \text{ mm}$. Des bandelettes de dimensions $40 \times 10 \text{ mm}^2$ ont été prélevées sur la largeur du dépôt dans le but de déterminer l'épaisseur de matière ferromagnétique déposée par une méthode de pesée. Des analyses par ICP-AES des échantillons prélevés ont permis de mesurer la variation en composition sur la largeur du film (cf Figure 3.19). Comme attendu, le rapport Nb/Zr croît continûment de 1.1 à 3.

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

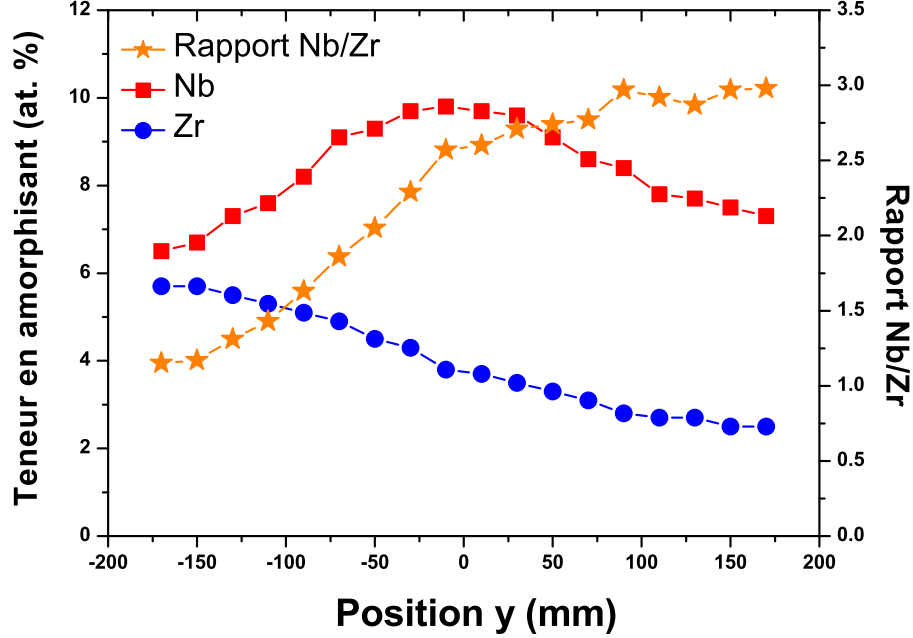


FIGURE 3.19 – **Variation de la teneur en amorphisant sur la largeur du film.** Le choix des éléments de la cible composite a permis d'induire un rapport Nb/Zr croissant dans la largeur du film. La position $y = 0$ correspond au centre du film.

Les mesures du coefficient de magnétostriction sont effectuées avec le dispositif de mesure spire sous contrainte. Un champ magnétique de 30 Oe est appliqué afin de saturer l'échantillon perpendiculairement à la direction de la contrainte exercée. La variation du coefficient de magnétostriction et de l'anisotropie en fonction du rapport Nb/Zr est représentée sur la Figure 3.20. Il est intéressant de noter que λ_s montre une dépendance linéaire en fonction du taux Nb/Zr alors que le taux de cobalt n'est pas maintenu constant. C'est pourquoi une loi en $\lambda_s = A x_{\text{Nb}}/y_{\text{Zr}}$ qui implique $x_{\text{Nb}} + y_{\text{Zr}} = \text{cste}$ ne peut être appliquée. De plus, une loi de dilution $\lambda_s = \lambda_{\text{CoNb}} x_{\text{Nb}} + \lambda_{\text{CoZr}} y_{\text{Zr}}$ ne reproduit pas le comportement de λ_s pour un alliage ternaire. En conclusion, λ_s est positif pour Nb/Zr < 2.7, négatif pour Nb/Zr > 2.7 et tend à être zero-magnétostrictif pour un rapport Nb/Zr = 2.7. Dans la littérature, la composition zéro-magnétostrictive est obtenue pour un rapport Nb/Zr = 1.85 [101]. Ces résultats illustrent également le rôle prépondérant de l'état de contraintes sur la valeur du coefficient de magnétostriction mesurée.

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

Lorsque la teneur en Nb augmente, l'anisotropie magnétique doit croître puisque l'amplitude du couplage spin-orbite augmente en proportion. Cependant l'anisotropie est constante ($K = 1 \pm 0.1 \text{ kJ/m}^3$) pour un rapport Nb/Zr compris entre 1.3 et 2.6 et croît seulement en dehors (cf Figure 3.20). Une contribution de l'anisotropie magnéto-élastique ($K = K_0 + K_\sigma$) est supposée pour interpréter ce comportement. Dans cette intervalle de composition, K_σ compenserait l'augmentation de K_0 , de manière à ce que K soit constante. Une analyse quantitative ne peut être menée puisque toutes les grandeurs invoquées varient avec la composition.

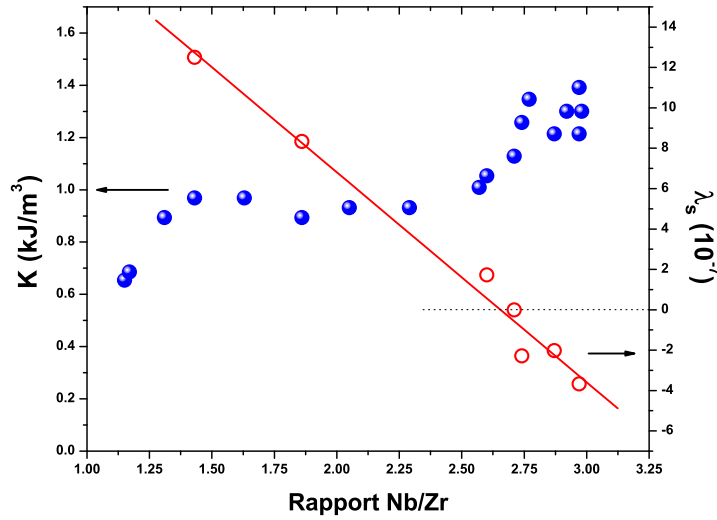


FIGURE 3.20 – Dépendance de K et λ_s en fonction du rapport Nb/Zr. Le coefficient de magnétostriction décroît linéairement avec le rapport Nb/Zr.

3.3.1.5 Comportement en température de l'aimantation

La dépendance en température de l'aimantation est riche en enseignement puisqu'elle permet d'évaluer la température de Curie de l'alliage et ainsi de calculer l'intégrale d'échange J_{ex} à partir de la relation suivante :

$$J_{ex}^{\text{Co-M}} = \frac{3k_B T_c}{2ZS(S+1)} \quad (3.4)$$

où $Z = 12(100 - y)/100$ correspond au nombre moyen de plus proches voisins en cobalt. a désigne une distance inter-atomique et $S = 2.7$ est le spin du cobalt [3].

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

Les courbes d'aimantation entre 290 et 970 K des alliages $\text{Co}_{94}\text{Zr}_6$ et $\text{Co}_{88.5}\text{Nb}_{11.5}$ sont représentées sur la Figure 3.21. L'aimantation $M(T)$ est normalisée à partir de l'aimantation à saturation du cobalt cristallin à 0 K : $M = M_s(T)/M_s^{\text{Co}}(0)$. Quel que soit l'alliage considéré, M décroît légèrement entre 290 et 700 K, puis présente une brusque variation à des températures supérieures à 700 K. Cette variation est due soit à la cristallisation de l'alliage soit à une transformation de phase de l'amorphe. Cette dernière est du même type que la transformation martensitique du cobalt pur à 690 K : h.c.p. \leftrightarrow c.f.c.. Il est fréquent de trouver la coexistence de ces deux phases à température ambiante avec la phase h.c.p. en plus forte majorité. Ainsi la variation de l'aimantation observée pour les alliages amorphes riches en cobalt à $T = 700$ K est associée à la transformation allotropique du cobalt et à la formation de phase cristalline dérivée ($\text{Co}_{23}\text{Zr}_6$) [102].

De ce fait, il est intéressant de comparer le comportement de $M(T)$ des alliages amorphes à base cobalt avec celui du cobalt pur cristallin. Sur la Figure 3.21 sont reportés les points expérimentaux de la phase h.c.p. à basse température et de la phase c.f.c. à haute température issus du Landolt-Börnstein [2]. Il est remarquable que pour $800 < T < 900$ K, les alliages binaires présentent une aimantation réduite voisine de celle du cobalt c.f.c., avant de décroître plus rapidement. Une loi empirique permet de mimer le comportement de $M(T)$ du cobalt pur, pour lequel la température de Curie est égale à 1404 K (cf Figure 3.21). Cette loi résulte de la combinaison de la théorie des excitations d'ondes de spin à basse température et de la loi de comportement critique avec un exposant critique universel au voisinage de la température de Curie [103, 104] :

$$M(T) = \frac{(1 - \tau)^\beta}{(1 - \beta\tau - \alpha\tau^{3/2})} \quad (3.5)$$

avec $\tau = T/T_c$. $\beta = 0,36$ est l'exposant critique universel pour un modèle de type Heisenberg et $\alpha = 0.078$ pour le cobalt [2].

Pour $x, y < 0.3$, il n'est donc pas possible de mesurer expérimentalement la température de Curie des alliages amorphes à base cobalt étant donné que $T_c > T_x$. Néanmoins, la température de Curie des alliages binaires peut être estimée en extrapolant les données expérimentales avec la relation (3.5). On obtient $T_c = 1210$ K pour l'alliage $\text{Co}_{94}\text{Zr}_6$ et 1105 K pour l'alliage $\text{Co}_{88.5}\text{Nb}_{11.5}$ (cf Figure 3.21). Notons

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

que la diminution de T_c avec le taux d'amorphisant ne suit pas une loi de la forme : $T_c^{\text{alliage}} = T_c^{\text{Co}} \times (x/100)$. L'intégrale d'échange³ du cobalt pur vaut $J_{ex}^{\text{Co}} = 4.5 \times 10^{-21}$ J et est estimée à 4.1×10^{-21} J pour les alliages $\text{Co}_{94}\text{Zr}_6$ et $\text{Co}_{88.5}\text{Nb}_{11.5}$ en appliquant la relation (3.4).

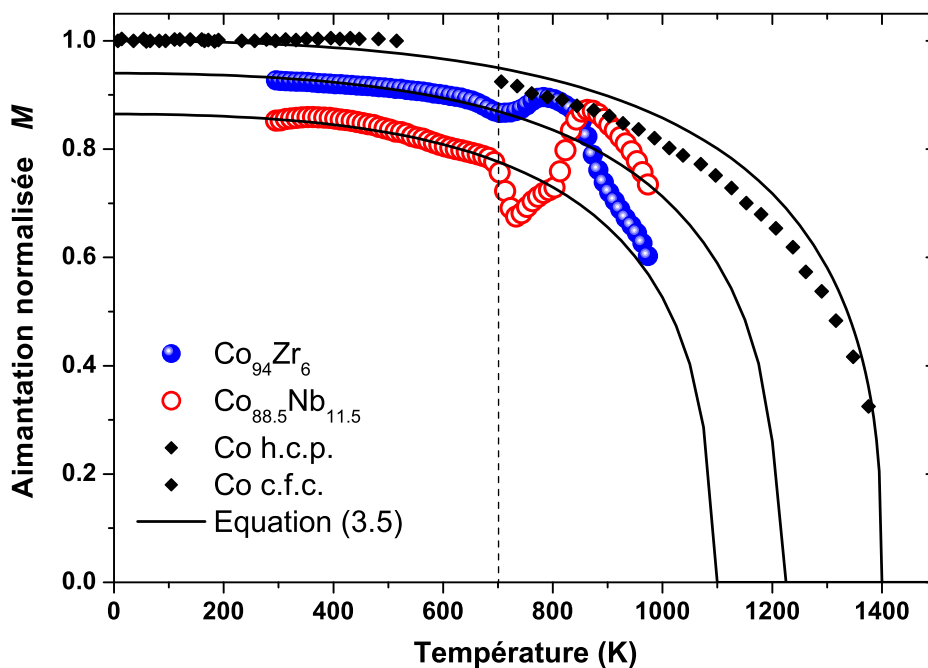


FIGURE 3.21 – **Dépendance en température de l'aimantation à saturation des alliages $\text{Co}_{94}\text{Zr}_6$ et $\text{Co}_{88.5}\text{Nb}_{11.5}$.** L'aimantation est normalisée par rapport à l'aimantation à saturation du cobalt h.c.p. à 0 K. La température de Curie des alliages CoZr et CoNb ne peut être déterminée en raison de la formation d'une phase cristalline à ≈ 700 K. Les points expérimentaux de la phase h.c.p. à basse température et de la phase c.f.c. à haute température sont issus du Landolt-Börnstein [2]. Le comportement de $M_s(T)$ est modélisé à partir de la relation (3.5).

3. Il est également d'usage de définir la constante d'échange qui vaut $A^{\text{Co}} = 1.5 \times 10^{-11}$ J/m pour le cobalt pur et vaut 1.4×10^{-11} J/m pour $\text{Co}_{94}\text{Zr}_6$ et $\text{Co}_{88.5}\text{Nb}_{11.5}$ en appliquant la relation (1.1).

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

3.3.1.6 Résistivité électrique

Les applications hyperfréquences nécessitent l'emploi de matériau à résistivité électrique élevée en raison de l'effet de peau. C'est pourquoi la résistivité des couches minces magnétiques d'alliages CoNb et CoZr a été mesurée par la méthode des quatre pointes (cf Annexe B). La Figure 3.22 montre une dépendance linéaire de la résistivité en fonction du taux d'amorphisant. Elle varie de $95 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ pour $x = 5.3 \text{ at.}\%$ à $145 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ pour $y = 16.5 \text{ at.}\%$. L'épaisseur de peau est minimale pour les alliages riches en cobalt. Comme pour l'aimantation à saturation, la nature de l'élément ajouté (Nb ou Zr) semble avoir peu d'effet sur la valeur de la résistivité.

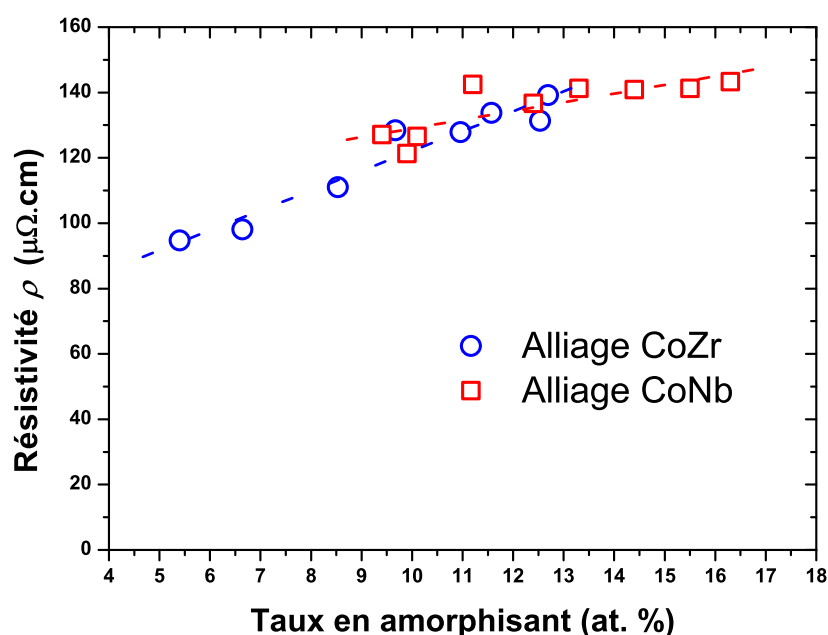


FIGURE 3.22 – Variation de la résistivité en fonction du taux d'amorphisant.

3.3. INFLUENCE DE LA COMPOSITION SUR LES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

3.3.2 Propriétés magnétiques dynamiques

La Figure 3.23 montre la perméabilité hyperfréquence de 100 MHz à 6 GHz des alliages CoNb et CoZr. Les spectres sont modélisés à partir de l'équation de LLG (cf Chapitre I). Pour un taux équivalent en élément non-magnétique $x = y = 11$ at.%, l'alliage CoZr résonne à plus haute fréquence que l'alliage CoNb. La Figure 3.24 présente le comportement de la fréquence de résonance f_r et de la perméabilité initiale μ'_i pour différentes conditions de dépôt. La fréquence de résonance et la perméabilité initiale varient faiblement avec la pression de gaz plasmagène pour l'alliage CoNb (cf Figure 3.24 (a)) et avec la puissance W_s pour l'alliage CoZr (cf Figure 3.24 (b)). Les couches minces CoZr déposées à forte pression et à forte puissance présentent des fréquences de résonance plus élevées et des perméabilités initiales plus faibles que pour les autres conditions de dépôt. **Aucune corrélation entre les propriétés hyperfréquences et la composition ou les conditions de dépôt n'apparaît de manière évidente.**

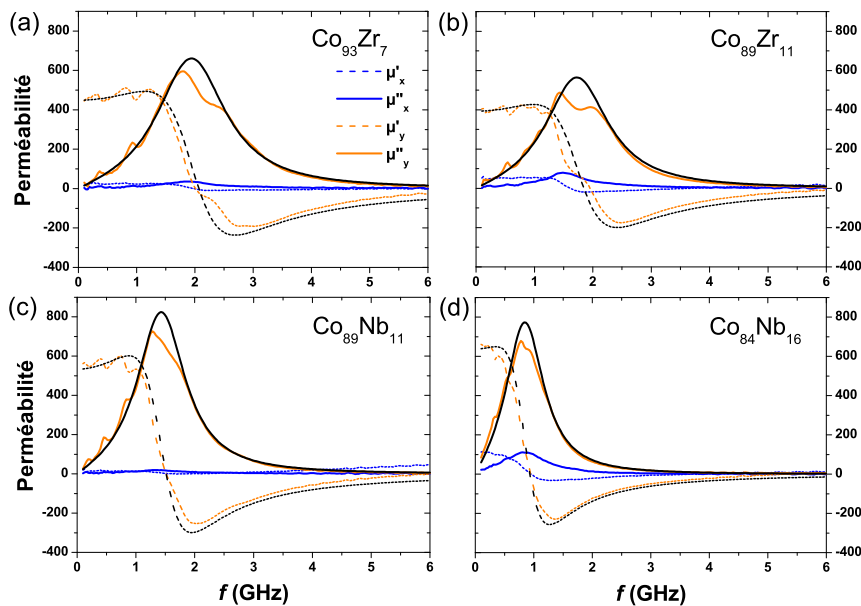


FIGURE 3.23 – Spectres hyperfréquences pour différentes compositions d'alliage binaire : CoZr (a-b) et CoNb (c-d). En noir sont représentées les perméabilités réelle et imaginaire calculées à partir de l'équation de LLG.

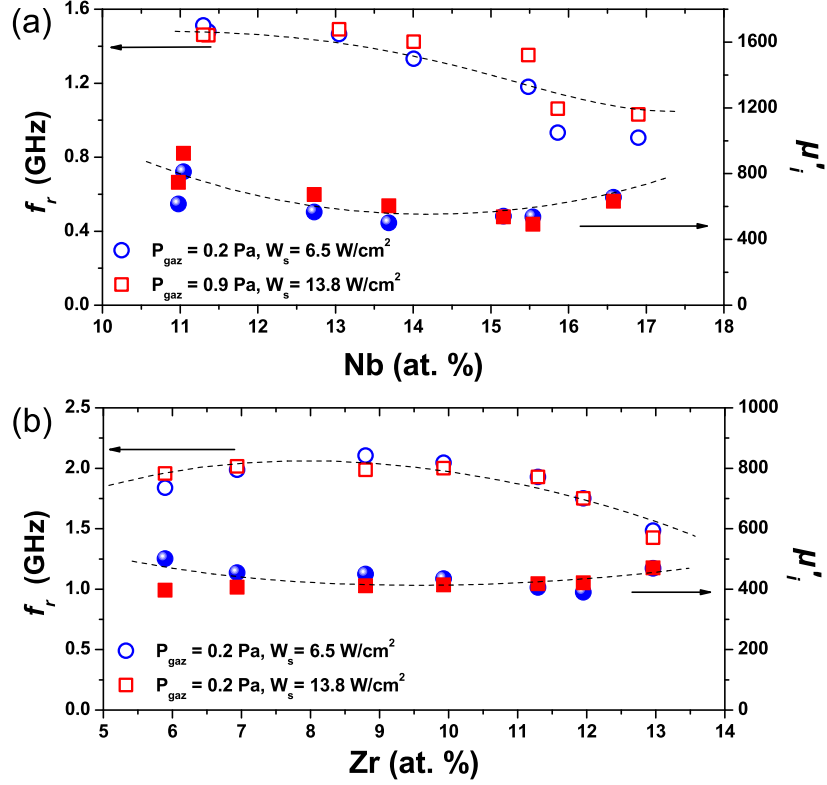


FIGURE 3.24 – Variations de la fréquence de résonance et de la perméabilité initiale en fonction du taux d'amorphisant pour l'alliage CoNb (a) et CoZr (b).

3.4 Réorientation de l'anisotropie magnétique

Elle est d'un intérêt majeur tant sur le plan industriel pour l'optimisation des propriétés magnétiques que sur le plan fondamental pour la compréhension des mécanismes physiques mis en jeu. Au même titre que la magnétostriction, l'aptitude à la réorientation de l'axe d'aimantation permanente est une propriété extrêmement sensible à la composition et aux paramètres de pulvérisation. La réorientation de l'anisotropie magnétique est un mécanisme thermiquement activé effectuée au cours d'un :

- traitement thermique sous champ.
- traitement thermique sous contrainte.

3.4.1 Traitement thermique sous champ

La réorientation de l'anisotropie magnétique via un traitement thermique sous champ statique a fait l'objet de nombreux travaux, notamment de la part de la communauté scientifique japonaise [70, 105, 106, 107]. Les travaux de Tomita ont montré que l'énergie d'anisotropie la plus faible est obtenue lorsque le champ magnétique appliqué à 90° de l'axe de facile aimantation initial [106]. C'est pourquoi, nous n'étudierons dans cette partie que le traitement thermique sous champ transverse pour lequel l'effet est exacerbé. Les paramètres du traitement thermomagnétique sont la rampe en température r (K/min), la température de recuit T_a , la durée du palier d (heure) et l'intensité du champ appliqué H_0 .

3.4.1.1 Effet du champ magnétique

La Figure 3.25 présente l'évolution des cycles d'hystérésis et des spectres hyperfréquences de couches minces $\text{Co}_{89}\text{M}_{11}$ à l'état brut de dépôt et à la suite d'un traitement thermique sous champ transverse ou sans champ ($r = 2$ K/min, $T_a = 450$ K, $d = 12$ h, $H_0 = 150$ Oe). Les propriétés magnétiques sont reportées dans la Table 3.4. Les conditions d'élaboration sont : $W_s = 13.8$ W/cm² et $P_{\text{gaz}} = 0.2$ Pa.

Alliage	Propriétés	Brut de dépôt	Traitement thermique	Traitement thermomagnétique
$\text{Co}_{89}\text{Nb}_{11}$	θ (degré)	19.2	21.0	51.5
	K (J/m ³)	1010	927	265
	H_K (Oe)	21.5	20.4	5.8
	f_r (GHz)	1.39	1.42	1.03
$\text{Co}_{89}\text{Zr}_{11}$	θ (degré)	18.3	15.6	58.7
	K (J/m ³)	1095	1160	158
	H_K (Oe)	26.1	27	3.6
	f_r (GHz)	1.90	2.05	1.42

TABLE 3.4 – Comparaison des propriétés magnétiques des films CoNb et CoZr bruts de dépôt, après recuit sans champ et sous champ. L'angle de facile aimantation et l'anisotropie sont respectivement calculés en utilisant les relations (1.22) et (1.19). L'application d'un champ magnétique est nécessaire pour réorienter l'axe de facile aimantation.

3.4. RÉORIENTATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE

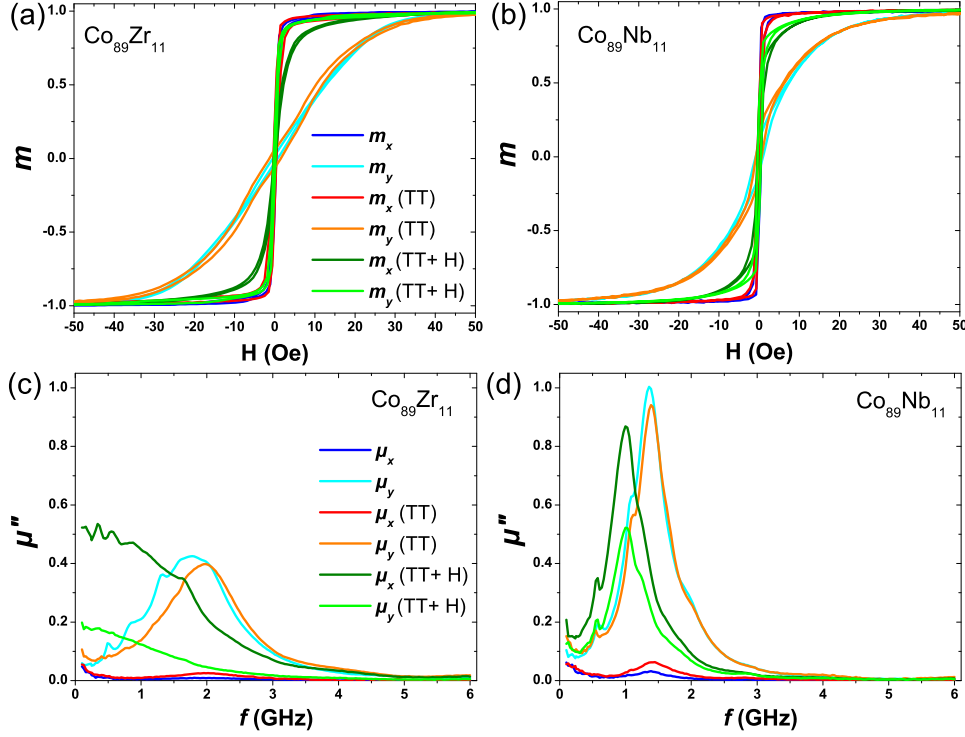


FIGURE 3.25 – Évolution des propriétés magnétiques à la suite d'un traitement thermique ou thermomagnétique pour les alliages $\text{Co}_{89}\text{M}_{11}$ avec $\text{M} = \text{Nb}$ et Zr . Les cycles d'hystérésis (a-b) et les spectres hyperfréquences (c-d) ont été mesurés avant et après un traitement thermique à 450 K pendant 12 h sous champ transverse (TT+H) ou non (TT). Les niveaux de perméabilité sont normalisés par rapport au maximum de μ'' de l'alliage $\text{Co}_{89}\text{Nb}_{11}$.

À l'état brut de dépôt, les couches minces de composition $\text{Co}_{89}\text{Nb}_{11}$ et $\text{Co}_{89}\text{Zr}_{11}$ possèdent des propriétés magnétiques similaires, au regard de l'anisotropie ($K = 1050 \pm 50 \text{ J/m}^3$) et de l'angle de facile aimantation ($\theta = 18.7 \pm 0.5^\circ$).

En comparaison des films bruts de dépôt, le traitement thermique sans champ a un effet minime sur l'angle de facile aimantation : θ augmente de 2° pour le film en CoNb et diminue de 3° pour le film en CoZr . De plus, la densité d'énergie d'anisotropie de la couche en CoNb augmente légèrement tandis que celle de la couche en CoZr décroît. La variation d'anisotropie avant et après recuit est de 100 J/m^3 pour

3.4. RÉORIENTATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE

chacun des alliages. Ce comportement est associé à la relaxation des contraintes au cours du traitement thermique. En effet, une diminution de la contrainte interne se traduit par une légère augmentation de l'anisotropie magnéto-élastique pour l'alliage CoNb de magnétostriction négative et une diminution de K_σ pour l'alliage CoZr de magnétostriction positive.

Au contraire, l'application d'un champ magnétique au cours du traitement thermique provoque une réorientation de l'axe de facile aimantation de manière importante : $\theta = 55 \pm 4^\circ$. Le traitement thermomagnétique effectué contribue à diminuer fortement l'anisotropie mais une anisotropie résiduelle persiste ($K = 210 \pm 60 \text{ J/m}^3$). À la suite de la réorientation sous champ, les spectres de perméabilité présentent une réponse à plus basse fréquence. Le champ magnétique se comporte comme une anisotropie effective qui aurait suffisamment de poids, en raison de la diminution en température des constantes d'anisotropie d'origine magnéto-cristalline pour infléchir un nouvel axe d'anisotropie.

3.4.1.2 Influence de la composition sur l'aptitude à la réorientation de l'axe de facile aimantation

Une attention particulière sera portée sur l'amplitude de réorientation de l'axe de facile aimantation ($\Delta\theta$) pour différentes compositions et conditions de pulvérisation. Soit $\Delta\theta = \theta_f - \theta_i$ avec θ_i l'angle initial de l'aimantation correspondant au film brut et θ_f l'angle d'aimantation après traitement thermomagnétique. Les caractéristiques du traitement thermique sous champ transverse sont $r = 2 \text{ K/min}$, $T_a = 450 \text{ K}$, $d = 12 \text{ h}$, $H_0 = 150 \text{ Oe}$.

Alliage CoZr

La Figure 3.26 présente l'aptitude à la réorientation de l'axe de facile aimantation en fonction du taux de Zr pour quatre conditions de dépôt. $\Delta\theta$ décroît avec le taux de Zr sauf pour les conditions de pulvérisation suivantes : $W_s = 13.8 \text{ W/cm}^2$ et $P_{\text{gaz}} = 0.2 \text{ Pa}$. Les couches minces présentant la plus grande faculté de réorientation de l'axe d'anisotropie sont celles déposées à faible pression et à faible puissance. Afin de prédire l'aptitude à la réorientation d'une couche, une corrélation avec la magnétostriction avait été entreprise mais il s'est avéré que la magnétostriction ne constitue pas une observable prédictive.

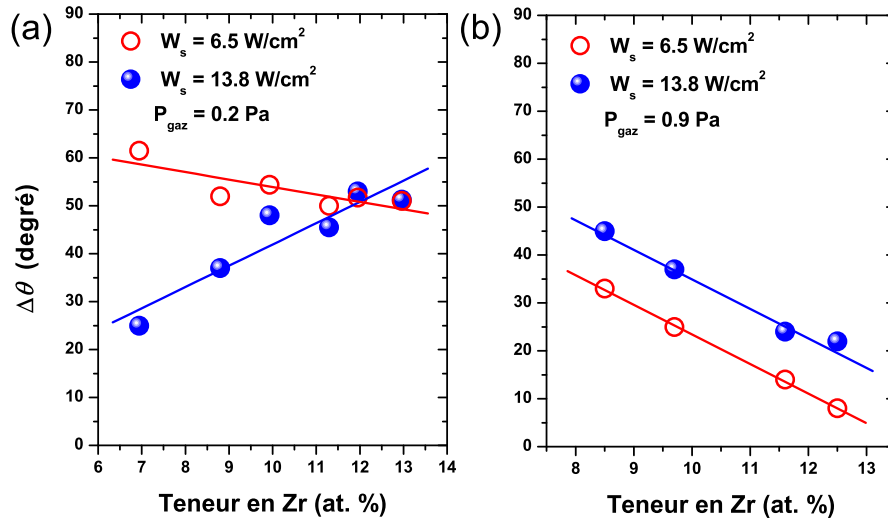


FIGURE 3.26 – Variation de l'angle de réorientation en fonction de la teneur en Zr. L'influence des conditions de pulvérisation est également observée pour deux puissances de dépôt avec $P_{\text{gaz}} = 0.2 \text{ Pa}$ (a) et pour $P_{\text{gaz}} = 0.9 \text{ Pa}$ (b).

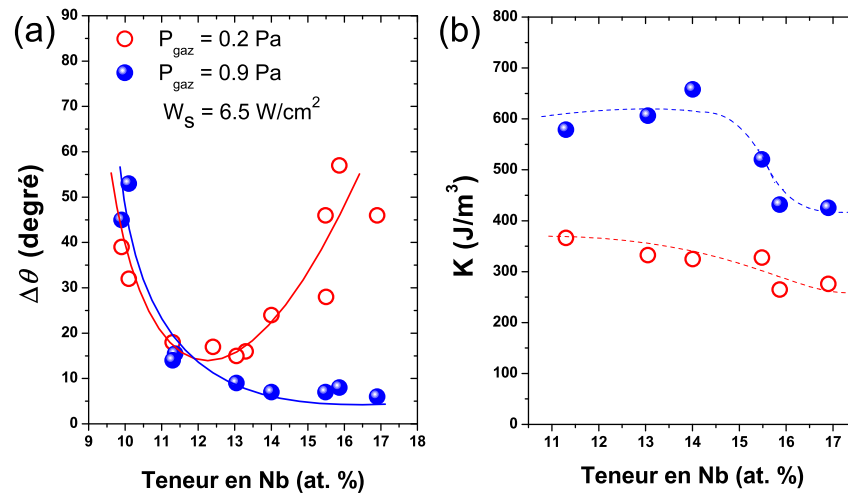


FIGURE 3.27 – Variation de l'angle de réorientation (a) et de l'anisotropie magnétique (b) en fonction de la teneur en Nb pour deux pressions en gaz plasmagène.

Alliage CoNb

La Figure 3.27 montre l'amplitude de réorientation $\Delta\theta$ en fonction du taux de Nb pour deux pressions de gaz. À faible teneur en Nb, $\Delta\theta$ décroît avec le taux de Nb quelle que soit la pression en gaz plasmagène. À forte proportion en Nb, le comportement diffère selon la pression : $\Delta\theta$ augmente avec x pour $P_{\text{gaz}} = 0.2$ Pa tandis que $\Delta\theta$ est constant pour $P_{\text{gaz}} = 0.9$ Pa. Il est notable que $\Delta\theta$ ne suit pas une dépendance linéaire en fonction du taux de Nb contrairement aux alliages CoZr. L'effet de la pression sur la réorientation de l'anisotropie magnétique est visible pour des fortes teneurs en Nb uniquement. De plus, l'anisotropie magnétique ne peut être inférieure à 250 J/m^3 après le traitement thermomagnétique réalisé.

En règle générale, l'aptitude à la réorientation de l'anisotropie magnétique tend à décroître avec le taux de cobalt. L'existence de cas contraires illustre toute la difficulté de modéliser et prédire cette propriété. L'anisotropie et l'aptitude à la réorientation seraient extrêmement sensibles à l'ordre local qui fluctue avec la composition et les conditions de dépôt.

3.4.2 Traitement thermique sous contrainte

Un traitement thermique sous contrainte permet également de réorienter l'anisotropie magnétique. Le mécanisme de réorientation sous contrainte s'appuie sur le couplage magnéto-élastique via la contrainte appliquée et sur le couplage spin-orbite via la déformation de l'ordre local, tandis que le traitement thermomagnétique fait essentiellement intervenir le couplage spin-orbite. Suzuki a notamment étudié par diffraction des rayons-X⁴ la variation de l'anisotropie de films métalliques amorphes avant et après traitement thermique sous contrainte [65]. Ses travaux ont permis de mettre en évidence la présence d'une anisotropie structurale liée à l'ordre directionnel de paire et donc à l'ordre topologique. Ainsi le fait d'appliquer une contrainte contribue à modifier l'ordre local en déformant les polyèdres dans une direction donnée et à instaurer une anisotropie structurale.

Expérimentalement, des éprouvettes de dimensions $200 \times 10 \text{ mm}^2$ ont été prélevées dans le film ferromagnétique, parallèlement à l'axe de facile aimantation. Une contrainte de traction est opérée à l'aide d'une masse fixée à l'extrémité de l'éprou-

4. Energy Dispersive X-Ray Diffraction : EDXD

3.4. RÉORIENTATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE

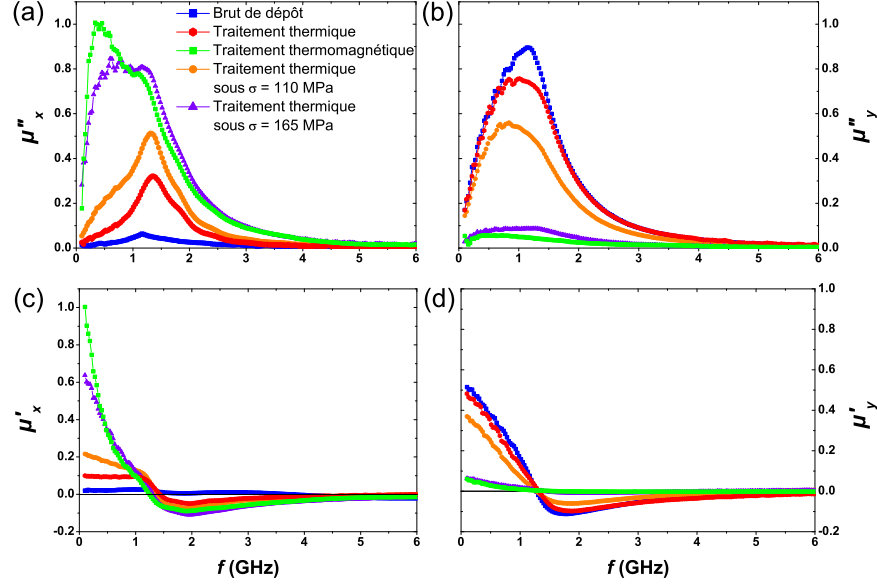


FIGURE 3.28 – **Réorientation de l'anisotropie magnétique.** Comparaison des spectres de perméabilité d'échantillons brut de dépôt, après traitement thermique sans champ, sous champ et sous contrainte. Les niveaux de perméabilité sont normalisés par rapport à ceux de l'échantillon après traitement thermomagnétique.

vette. Le traitement thermique (12 h à 450 K) est réalisé dans une étuve sous atmosphère neutre. Pour un couche métallique déposée sur un substrat polymère, la contrainte perçue par le film s'écrit :

$$\sigma = \frac{F}{l(t_f + t_s \frac{E_s}{E_f})} \quad (3.6)$$

où F désigne la force appliquée sur le substrat polymère et la couche métallique. La contrainte dépend de l'épaisseur t ainsi que du module d'Young (E) du substrat et du film métallique.

La Figure 3.28 présente les spectres de perméabilité de couches minces à l'état brut de dépôt et après recuit sans et sous contrainte. Le film brut de dépôt présente une anisotropie uniaxe selon l'axe x avec $\theta = 11.1^\circ$, comme l'illustrent les forts niveaux en μ_y et quasi-nuls en μ_x . Le traitement thermique seul contribue à

3.4. RÉORIENTATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE

réorienter légèrement l'axe de facile aimantation ($\theta = 24.4^\circ$) puisque des niveaux en μ_x sont observés. Puis une contrainte a été appliquée lors du traitement thermique. Une contrainte $\sigma = 110$ MPa induit une réorientation partielle de l'axe de facile aimantation ($\theta = 37.4^\circ$) et presque totale pour une contrainte $\sigma = 165$ MPa ($\theta = 72.5^\circ$). À titre de comparaison, les spectres de perméabilité à la suite d'un traitement thermique sous champ sont également reportés sur la Figure 3.28. L'application d'une contrainte via le couplage magnéto-élastique permet de réorienter l'axe de facile aimantation de manière similaire au traitement thermomagnétique ($\theta = 76.2^\circ$). Connaissant la valeur du coefficient de magnétostriction à saturation, il est possible d'estimer la valeur de l'énergie magnéto-élastique. Ainsi $K_\sigma = 195$ J/m³ pour σ_{110} et $K_\sigma = 292$ J/m³ pour σ_{165} . Il est notable que les valeurs d'anisotropie magnéto-élastique estimées sont très inférieures à l'énergie d'anisotropie magnétique de la couche mince avant recuit. L'application d'une contrainte (ou d'un champ) constitue une faible contribution mais celle-ci est suffisante pour infléchir un nouvel axe d'anisotropie à une température de recuit suffisamment élevée.

3.4.3 Modèles d'anisotropie magnétique induite : origine et réorientation

L'origine et la réorientation de l'anisotropie magnétique induite ont été interprétées à partir du modèle d'ordre directionnel diatomique de Néel et Tanigushi pour les alliages ferromagnétiques cristallins et les alliages amorphes composés de deux éléments magnétiques [108]. Le modèle d'ordre directionnel monoatomique de Néel et Slonczewski est adapté au cas des alliages amorphes de type MT-Md avec un seul élément magnétique [109]. Cependant ils ne s'appliquent pas aux alliages de type MT-M [64].

Corb a corrélé pour la première fois une légère variation de l'anisotropie magnétique avec une transformation de phase d'un alliage amorphe à base cobalt, à la suite d'un traitement thermique sous champ magnétique [110]. Une modification de l'ordre local est invoquée pour expliquer cette fluctuation d'anisotropie magnétique. L'ordre local de l'alliage évoluerait en fonction de la température d'une structure constituée essentiellement d'agrégats de symétrie trigonale proche de la phase cristalline hexagonale à une structure formée de motifs de symétrie tétraédrique voisine de la phase

3.4. RÉORIENTATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE

cristalline cubique. Cette transition serait permise par la présence d'icosaèdres qui se déforment en l'une ou l'autre des deux autres symétries. Kamp a mis expérimentalement en évidence la corrélation entre l'anisotropie magnéto-cristalline et l'ordre atomique à courte portée pour des couches minces $\text{Fe}_{0.5}\text{Pd}_{0.5}$ par dichroïsme magnétique circulaire rayons-X [111].

En s'inspirant des modèles d'ordre directionnel d'origine pseudo-dipolaire et des résultats de Corb, Suran a développé un modèle phénoménologique de réorientation de l'anisotropie magnétique pour les alliages amorphes de type Co-M avec $M = \text{Ti}, \text{Zr}$ [112]. Le fondement de ce modèle est de supposer un ordre directionnel lié à une surstructure sensible à l'ordre à courte portée topologique et chimique. L'analyse microstructurale réalisée au microscope électronique en transmission pour des couches minces de composition CoZr a révélé la présence de trois clusters caractéristiques [64]. S'appuyant sur les modèles structuraux de motifs élémentaires, l'ordre local des alliages métalliques amorphes Co-M est décrit par un **réseau aléatoire de sites icosaédriques (I), octaédriques (O) et trigonaux (T)** en plus ou moins fortes proportions selon les conditions de dépôt. Les sites trigonaux sont privilégiés à forte pression, c'est-à-dire lorsque l'énergie des particules pulvérisées est plus faible en raison du nombre de collisions accru.

De cette observation, Suran décompose l'anisotropie magnétique comme la somme d'une anisotropie réversible et d'une anisotropie irréversible : $K = K^r + K^i$, dont chacune des contributions est associée à un motif structural donné.

- **L'anisotropie locale réversible K^r** est liée à l'ordre chimique et est associée aux agrégats de type I et O. La totalité de l'anisotropie réversible peut être éliminée lors d'un traitement thermique sous champ magnétique tournant ou être créée dans une direction quelconque lors d'un traitement thermomagnétique. La valeur de K^r est indépendante de la pression du gaz plasmagène fixée lors du dépôt [64].
- **L'anisotropie locale irréversible K^i** est sensible à l'ordre topologique et est liée aux clusters de type T. La valeur de K^i à l'état brut de dépôt varie en fonction de la pression de gaz. Sa direction et son intensité restent inchangées au cours d'un traitement thermique tant que l'environnement topologique reste identique.

3.4. RÉORIENTATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE

Les travaux de Suran au travers des thèses de Naili et de Ounadjela mettent ainsi en exergue la forte corrélation entre les propriétés structurales et les propriétés magnétiques d'une part et entre l'aptitude à la réorientation de l'anisotropie magnétique et les conditions de dépôt d'autre part [64, 113]. Néanmoins, ce modèle phénoménologique ne tient pas compte de la plus grande diversité en polyèdres constituant les alliages métalliques amorphes [92].

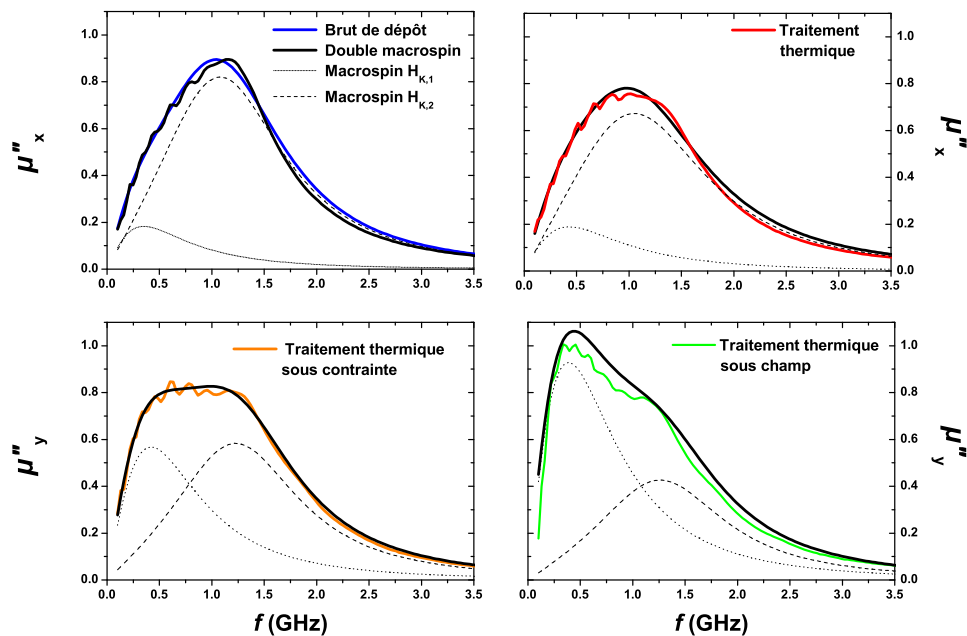


FIGURE 3.29 – Décomposition à l'aide d'un double macrospin de la perméabilité hyperfréquence de couches minces brute de dépôt (a), après un traitement thermique sans champ (b) sous contrainte (c) et sous champ (d). Les niveaux de perméabilité sont normalisés par rapport à ceux de l'échantillon après traitement thermomagnétique.

En s'inspirant des travaux de Suran, une tentative de modélisation des spectres expérimentaux a été effectuée à l'aide d'un double macrospin où deux anisotropies sont pondérées selon une loi de mélange. Les paramètres d'ajustement sont récapitulés dans la Table 3.5. La Figure 3.29 présente la perméabilité hyperfréquence expérimentale et celle obtenue à partir d'un double macrospin. Il s'avère que les spectres

3.4. RÉORIENTATION DE L'ANISOTROPIE MAGNÉTIQUE

de perméabilité brut de dépôt, après traitement thermique sans/sous champ ou sous contrainte se modélisent parfaitement avec une composante d'anisotropie faible $H_{K1} = 6 \pm 1$ Oe et une composante plus élevée $H_{K2} = 19.5 \pm 2$ Oe. En particulier, le traitement thermique sous champ ou sous contrainte engendre la disparition de la forte anisotropie réversible et favorise par conséquent le poids de la faible anisotropie irréversible. D'une toute autre manière, considérer un double macrospin pourrait également préfigurer l'existence d'une distribution d'anisotropie.

Échantillon	$H_{K,1}$ (Oe)	Poids 1	$H_{K,2}$ (Oe)	Poids 2	α
Brut de dépôt	4.9	0.09	17.6	0.91	0.05
Traitement thermique	7.0	0.12	18.7	0.88	0.06
Traitement thermique sous contrainte $\sigma = 165$ MPa	5.7	0.29	20.9	0.71	0.05
Traitement thermique sous champ	5.4	0.46	20.9	0.54	0.05

TABLE 3.5 – Paramètres d'ajustement des spectres expérimentaux à partir d'un double macrospin.

3.5 Conclusion

Ce chapitre a permis d'introduire le procédé de pulvérisation cathodique assistée magnétron, la technique de dépôt au déroulé ainsi que les alliages CoNb et CoZr employés au cours des chapitres suivants.

L'emploi de cibles composites a permis de déposer des films avec un gradient de composition dans la largeur du substrat polymère. Cette possibilité offre des perspectives intéressantes pour l'étude de nouvelles compositions binaires ou ternaires, à moindre coût et temps. De ce fait, une étude des propriétés structurales et magnétiques des couches minces magnétiques a été réalisée en fonction de la composition pour les alliages CoNb et CoZr :

- la caractérisation structurale par diffraction des rayons-X a confirmé le caractère amorphe des couches minces élaborées. La caractérisation de l'ordre local topologique et chimique a été initiée en menant des expériences de diffraction de neutrons. La présence du substrat en Vanadium a amoindri l'intensité du signal de la couche ferromagnétique et rendu délicate l'exploitation des données. En complément, des expériences d'EXAFS ont été réalisées pour lesquelles l'interprétation des données est en cours.
- une étude exhaustive des propriétés magnétiques statiques et dynamiques a été effectuée. Les écarts en valeur du coefficient de magnétostriction à saturation par rapport à la littérature montrent l'influence du procédé et des conditions de d'élaboration sur les propriétés des couches minces élaborées.

Pour conclure ce chapitre, l'aptitude à la réorientation de l'axe de facile aimantation à la suite d'un traitement thermomagnétique a été reportée en fonction de la composition pour les alliages CoNb et CoZr. L'extrême sensibilité de l'aptitude à la réorientation en fonction de la composition et des conditions de dépôt est liée à l'ordre local, dont la caractérisation a été initiée. L'interprétation des spectres de perméabilité des films brut de dépôt et après recuit sans champ, sous champ ou sous contrainte laisse présager l'existence d'une composante réversible et irréversible de l'anisotropie ou bien d'une dispersion d'anisotropie.

Deuxième partie

Modélisation de couches minces magnétiques inhomogènes

Chapitre 4

Prise en compte de la dispersion d'aimantation dans l'épaisseur

Sommaire

4.1	Origines liées au procédé d'élaboration	110
4.2	Dispersion d'anisotropie en angle	116
4.3	Dispersion d'anisotropie en intensité	123
4.4	Application pour une monocouche déposée au déroulé sur un substrat polymère	124
4.5	Conclusion	130

À l'état brut de dépôt, les couches minces ferromagnétiques à base cobalt possèdent une faible anisotropie uniaxe dans le plan. Pour cette raison, le comportement magnétique global est reproduit en considérant un seul et unique macrospin. Néanmoins, les films magnétiques doux sont particulièrement enclins à présenter une dispersion d'aimantation induite par le procédé et les conditions d'élaboration. Ainsi un bref inventaire des sources de dispersion est reporté et une méthode de quantification de la distribution d'aimantation en angle et en intensité sera formulée. Pour ce faire, la réponse magnétique d'une couche mince est décomposée dans l'épaisseur comme la moyenne des réponses de n -macrospins, où tout couplage d'échange entre les macrospins est négligé. Cette approximation est raisonnable au 1^{er} ordre en raison des épaisseurs microniques des couches déposées pour lesquelles $t > \delta_B$ et $t \gg \delta_{ex}$. La prise en compte de la distribution d'anisotropie dans le calcul de la susceptibilité initiale en angle et sous champ permet d'affiner la modélisation du comportement magnétique des couches minces.

4.1 Origines liées au procédé d'élaboration

Lors de la croissance de la couche, une anisotropie magnétique uniaxe planaire est induite sous l'effet du champ magnétron résiduel. Cependant la technique de dépôt au déroulé et les conditions de pulvérisation engendrent une dispersion d'aimantation, laquelle est exacerbée par la géométrie cylindrique du tambour (cf Figure 4.1) [101, 114]. Du fait de leur caractère doux, les couches minces amorphes sont d'autant plus sensibles aux différentes sources de dispersion. Les diverses origines de la distribution d'aimantation d'un film brut de dépôt sont liées :

- à la morphologie de la couche (porosité).
- au gradient de contrainte dans l'épaisseur du film.
- au gradient de composition dans l'épaisseur du film.

La réorientation de l'axe de facile aimantation à la suite d'un traitement thermomagnétique engendre également une dispersion des axes d'anisotropie dans l'épaisseur lorsque la réorientation est partielle [9]. La structure en domaines magnétiques reflète une dispersion d'aimantation dans le plan de la couche dont la contribution se distingue sur le spectre de perméabilité par la présence de pics à basse fréquence [63]. Ces contributions ne seront pas abordées au cours de ce chapitre.

Déposer un film métallique au déroulé sur un tambour cylindrique induit des variations de composition et de morphologie de la couche par simple effet géométrique. Les angles d'incidence des atomes cibles sur le substrat polymère diffèrent fortement le long de la circonférence du tambour (cf Figure 4.1). Il en résulte en incidence normale la croissance d'une couche dense, dont le cliché par microscopie électronique à balayage est présenté sur la Figure 4.2 (a). Au contraire, pour des angles d'incidence des atomes éjectés $\beta > 50^\circ$, la croissance de la couche adopte une morphologie lamellaire inclinée (cf Figure 4.2 (b)). L'angle d'inclinaison Ψ des lamelles dépend de l'angle d'incidence β selon la loi $\tan(\Psi) = 1/2 \tan(\beta)$ [115, 116]. La porosité est élevée du fait de l'espacement entre les lamelles. Les dimensions caractéristiques des lamelles sont approximativement 50 nm de largeur, 100 nm de hauteur et de grande longueur selon la largeur du film (y). L'espacement entre les lamelles est de l'ordre de la dizaine de nanomètres et est responsable du découplage magnétique entre les lamelles. En conclusion, une couche mince déposée au déroulé sur un tambour cylindrique se compose d'une couche dense au cœur de la couche et de strates à morphologie lamellaire à chaque surface.

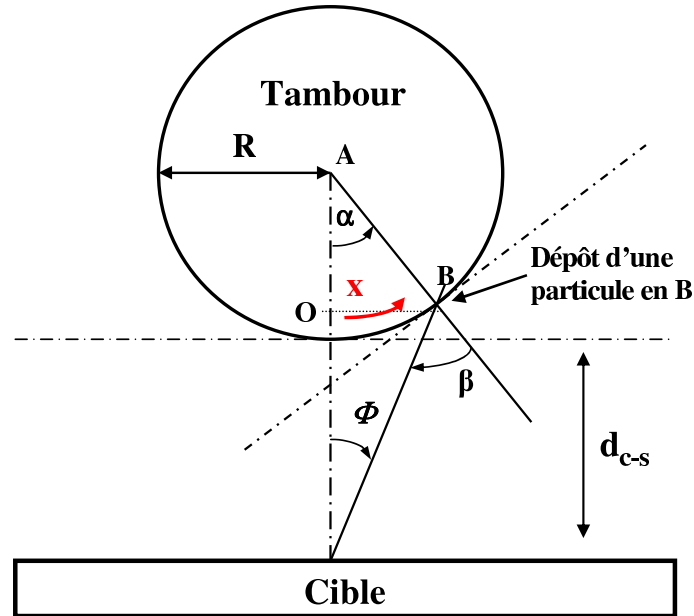


FIGURE 4.1 – Schéma du dispositif de dépôt par PVD au déroulé sur un tambour cylindrique. Lors d'un dépôt au déroulé, la variation des angles d'incidence des atomes éjectés sur le substrat polymère est à l'origine de la dispersion d'aimantation dans l'épaisseur de la couche.

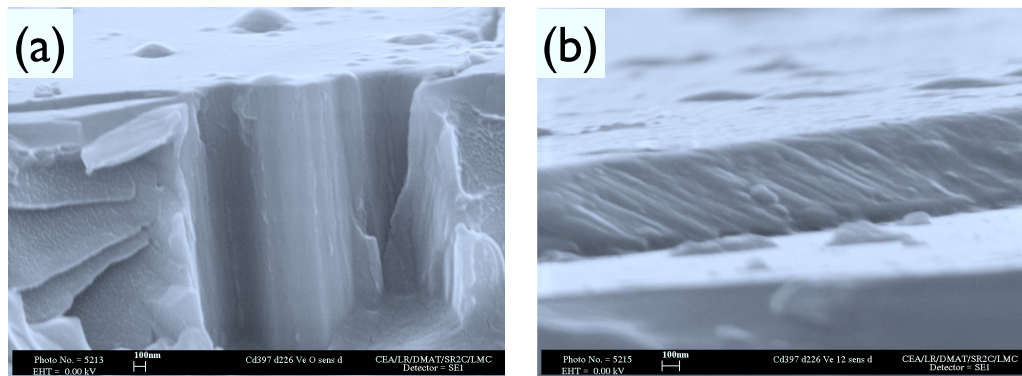


FIGURE 4.2 – Photographies par microscopie électronique à balayage de la couche dense déposée en incidence normale (a) et de la structure lamellaire inclinée pour des angles d'incidence $\beta > 50^\circ$ (b). Un film déposé au déroulé se compose au cœur d'une couche dense et aux surfaces de strates de morphologie lamellaire possédant une forte anisotropie de forme.

4.1. ORIGINES LIÉES AU PROCÉDÉ D'ÉLABORATION

Afin de caractériser séparément les propriétés mécaniques et magnétiques des strates dense et lamellaire, un dépôt statique sur un tambour cylindrique a été réalisé avec une cible à base cobalt et les paramètres d'élaboration suivants : $W_s = 13.8 \text{ W/cm}^2$, $P_{\text{gaz}} = 0.2 \text{ Pa}$, $d_{\text{c-s}} = 70 \text{ mm}$ et une durée de dépôt de 4.8 min. Des échantillons ont été prélevés dans la longueur du film de manière à suivre l'évolution des propriétés en fonction de l'angle d'incidence β sur la circonférence du tambour. Ainsi l'élaboration d'un film en statique permet d'évaluer la variation des propriétés dans l'épaisseur d'une couche qui serait déposée au déroulé.

La Figure 4.3 (a) montre la variation de l'inverse du rayon de courbure r_c du film en fonction de l'angle d'incidence β [117]. Le signe du rayon de courbure renseigne sur l'état de contrainte interne de la couche. La couche dense est dite en compression ($\sigma < 0$) et les deux strates à morphologie lamellaire sont en tension ($\sigma > 0$). Une variation de contraintes produit une variation du champ d'anisotropie via le couplage magnéto-élastique. Il est important de souligner que plus l'épaisseur de la couche est élevée et plus le gradient de contrainte est important. Il est également reconnu qu'un gradient de contrainte dans l'épaisseur résulte des hétérogénéités ou de la porosité présentes dans le film. De plus, le fait de déposer un film métallique micronique sur un substrat souple génère naturellement un gradient de contrainte de plusieurs dizaines de MPa [118]. L'existence d'un gradient de contrainte peut être à l'origine d'une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur via le couplage magnéto-élastique.

Sur la Figure 4.3, les analyses de composition par ICP-AES des échantillons prélevés le long de la circonférence du tambour révèlent un enrichissement en Co ainsi qu'un appauvrissement en Nb pour les films déposés en incidence normale à la cible. Aux grands angles d'incidence des atomes éjectés ($\beta > 50^\circ$), un appauvrissement en Co et un enrichissement en Nb sont observés¹. À la suite de l'impact des ions Ar^+ , les atomes de la cible sont arrachés avec des cônes d'éjection différents selon la nature de l'élément. Des cônes d'éjection plus importants pour le Nb (et le Zr) que pour le Co sont à l'origine de la diminution de 1 at.% en cobalt. Ces résultats démontrent l'existence d'un gradient de composition dans l'épaisseur de la couche. Des analyses de composition par EDS² au microscope électronique en transmission ont révélé un profil de composition dans l'épaisseur similaire³. Le MET a également permis de

1. Le zirconium suit les mêmes lois d'éjection que le niobium.

2. X-Ray Energy Dispersive Spectrometry

3. Une analyse SIMS, Secondary Ion Mass Spectrometry, l'a montré de manière qualitative.

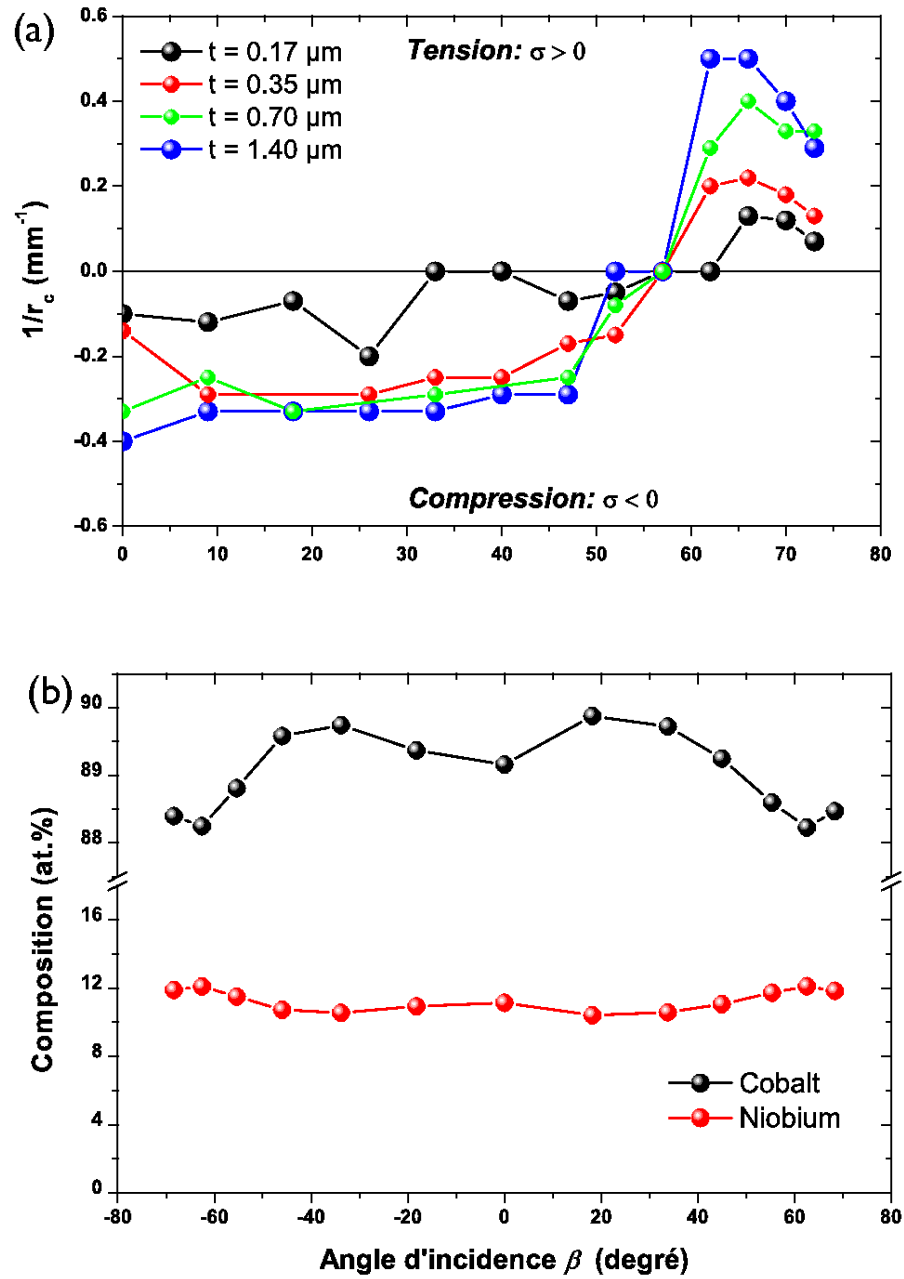


FIGURE 4.3 – Variations de l'inverse du rayon de courbure (a) et de la composition (b) en fonction de l'angle d'incidence β , qui se traduit par l'existence d'un gradient de contrainte et de composition dans l'épaisseur d'une couche déposée au déroulé.

4.1. ORIGINES LIÉES AU PROCÉDÉ D'ÉLABORATION

détecter la présence d'oxyde de zirconium en surface des structures lamellaires qui, en addition du vide existant, accentuerait le découplage magnétique. Il va de soi qu'un gradient de composition dans l'épaisseur engendre une variation des propriétés magnétiques (M_s , H_K , λ_s ...). Les propriétés magnétiques en fonction de l'angle

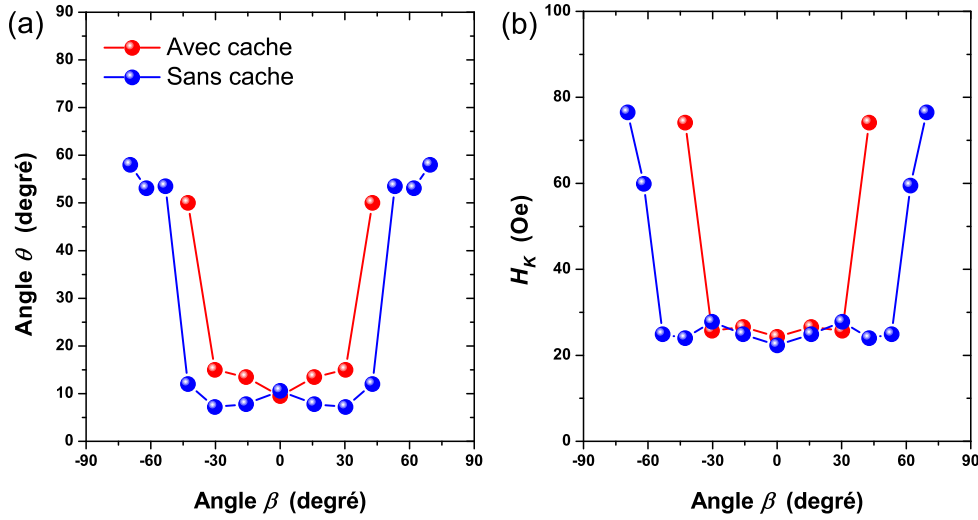


FIGURE 4.4 – Variations de l'angle (a) et de l'intensité (b) de l'anisotropie en fonction de l'angle d'incidence pour un dépôt sans cache et avec cache. Pour $\beta > 50^\circ$, on observe une rotation de l'angle de facile aimantation et une augmentation du champ d'anisotropie.

d'incidence β sont représentées sur la Figure 4.4. On distingue la configuration de dépôt avec ou sans cache. Ce dernier est placé en vis-à-vis de la cible afin de restreindre le cône d'éjection des atomes et de ne plus déposer sur les bords du tambour. Quelle que soit la configuration de dépôt, le cœur de la couche déposée en incidence normale possède un angle de facile aimantation faible ($\theta \approx 10^\circ$) et une anisotropie voisine de l'anisotropie moyenne de la couche déposée au déroulé ($H_K \approx 24$ Oe). Pour des angles $\beta > 50^\circ$, le comportement change radicalement : l'orientation moyenne de l'aimantation atteint 50° et le champ d'anisotropie augmente fortement ($H_K > 50$ Oe). L'orientation et l'intensité de l'anisotropie aux surfaces diffèrent fortement de celles du cœur de la couche puisque l'anisotropie de forme des structures en lamelle prend le pas sur l'anisotropie induite par le champ magnétron. La mise en place d'un cache annihile ou tout au moins réduit fortement l'épaisseur des strates possédant

4.1. ORIGINES LIÉES AU PROCÉDÉ D'ÉLABORATION

une structure lamellaire par rapport à l'épaisseur totale de la couche. Par la suite, seules les couches minces déposées par pulvérisation cathodique au déroulé sur un substrat polymère en utilisant le tambour cylindrique et le cache seront étudiées.

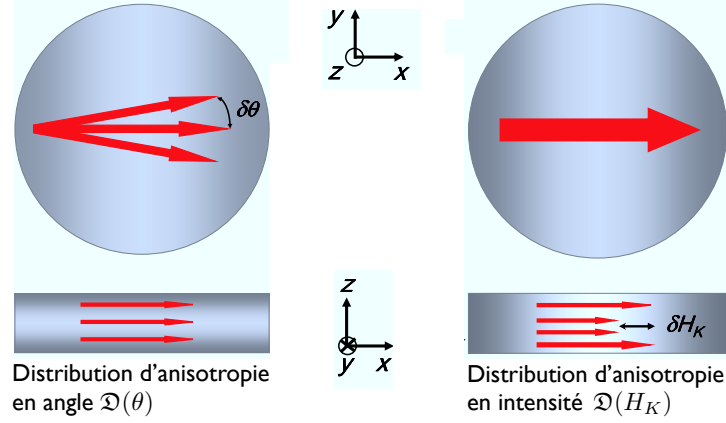


FIGURE 4.5 – Distribution d'anisotropie en angle $\mathfrak{D}(\theta)$ et en intensité $\mathfrak{D}(H_K)$.

Par conséquent, le comportement magnétique expérimental diffère en statique du modèle de Stoner-Wohlfarth et en dynamique du modèle gyromagnétique lorsque ne sont supposées qu'une seule orientation et qu'une unique valeur d'anisotropie magnétique (approximation du macrospin). Comme le suggèrent la Figure 4.4 et des mesures réalisées avec un VSM vectoriel [119], la distribution d'anisotropie résulte du produit de convolution d'une distribution en angle $\mathfrak{D}(\theta)$ et en intensité $\mathfrak{D}(H_K)$. $\mathfrak{D}(\theta, H_K)$ génère une dispersion d'aimantation couplée par l'énergie d'échange. À ce stade, l'hypothèse d'assimiler la réponse magnétique d'une couche mince comme la réponse résultante de n -macrospins sans couplage d'échange entre eux est formulée. Cette approximation est raisonnable pour les couches magnétiques douces d'épaisseur micronique ($t > 1000$ nm) puisque l'épaisseur de la couche est :

- supérieure à la largeur de la paroi de Bloch : $\delta_B = \sqrt{A/K} \approx 100$ nm.
- très supérieure à la longueur d'échange : $\delta_{ex} = \sqrt{2A/\mu_0 M_s^2} \approx 5$ nm.

Il en résulte que les axes de facile aimantation se superposent parfaitement avec les axes d'anisotropie. Ainsi les mesures d'aimantation renseignent sur la nature du profil des axes de facile aimantation et de manière équivalente sur la distribution d'anisotropie. Afin de quantifier chacune des distributions d'anisotropie, $\mathfrak{D}(\theta, H_K)$ est supposée comme le produit de $\mathfrak{D}(\theta)$ et de $\mathfrak{D}(H_K)$ (cf Figure 4.5).

4.2 Dispersion d'anisotropie en angle

Soit une couche mince d'anisotropie magnétique planaire K qui contraint l'aimantation à rester dans le plan (xy) . L'angle entre l'axe x et l'axe de facile aimantation est noté θ . Supposons maintenant que le matériau se compose d'une anisotropie uniforme dans le plan mais dont les axes diffèrent dans l'épaisseur de la couche (z). L'amplitude de l'anisotropie est maintenue constante. À l'échelle macroscopique et quel que soit le cas considéré, l'axe d'anisotropie magnétique de la couche mince est la résultante de tous les axes d'anisotropie dans l'épaisseur. La susceptibilité est retenue comme observable de la dispersion d'aimantation engendrée par la distribution des axes d'anisotropie. Dans le cas général, le tenseur de susceptibilité statique dans le plan (xy) s'exprime :

$$\bar{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_s \cos^2(\theta) & \chi_s \sin(\theta) \cos(\theta) \\ \chi_s \sin(\theta) \cos(\theta) & \chi_s \sin^2(\theta) \end{pmatrix}$$

où $\chi_s = M_s/H_K$ est la susceptibilité statique du matériau avec H_K l'intensité du champ d'anisotropie.

4.2.1 Cas d'une anisotropie uniaxe

Lorsque la distribution des axes d'anisotropie est nulle, la couche mince possède une unique anisotropie orientée selon x . Ainsi le tenseur de susceptibilité se simplifie fortement ($\theta = 0^\circ$) et s'écrit :

$$\bar{\chi} = \begin{pmatrix} \chi_s & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

En réalité, les niveaux de susceptibilité en χ_{yy} diffèrent de 0 en raison soit d'un léger désalignement d'origine expérimental de l'axe d'anisotropie par rapport au champ dynamique (h_x et h_y) soit de la dispersion des axes d'anisotropie [13]. Seule une mesure des spectres de susceptibilité en fonction de l'angle permet de faire la distinction entre les deux origines de la réponse hyperfréquence. Lorsque l'énergie totale du système est calculée sans échange (approximation des macrospins découplés), la

4.2. DISPERSION D'ANISOTROPIE EN ANGLE

susceptibilité initiale s'exprime [9, 120] :

$$\chi_i(\theta) = \frac{M_s \sin^2(\theta - \theta_h)}{\partial^2 G_t / \partial \theta^2} \quad (4.2)$$

soit exactement avec l'expression de $(\partial^2 G_t / \partial \theta^2)$ reportée dans le Chapitre I (1.11) :

$$\chi_i(\theta) = \frac{M_s \sin^2(\theta - \theta_h)}{H_K \cos(2\theta - 2\theta_K) + H_0 \cos(\theta - \theta_H)} \quad (4.3)$$

avec $H_K = 2K/\mu_0 M_s$. Cette relation présente les différents paramètres influant sur la valeur et le comportement en angle et/ou sous champ statique de la susceptibilité initiale.

4.2.2 Cas d'une distribution des axes d'anisotropie

Supposons maintenant que l'échantillon présente une dispersion des axes d'anisotropie dans le plan de la couche, quantifiée par la distribution⁴ $\mathfrak{D}(\theta)$ avec le paramètre de dispersion σ :

$$\mathfrak{D}(\theta) = \frac{1}{2\pi I_0 \left(\frac{1}{2\tau^2} \right)} \exp \left(\frac{\cos(2\theta)}{2\tau^2} \right), \quad (4.4)$$

où I_0 est la fonction de Bessel modifiée de première espèce d'ordre 0. Lorsque τ est élevé, $\mathfrak{D}(\theta)$ tend vers une constante et décrit la situation où la distribution des axes de facile aimantation est isotrope. Au contraire, lorsque la valeur de τ tend vers 0, la distribution est piquée et décrit le cas anisotrope : les axes de facile aimantation sont alignés selon x ($\theta = 0$). La distribution $\mathfrak{D}(\theta)$ traduit ainsi le passage d'un régime isotrope à anisotrope via τ , tout en étant facilement intégrable dans le but d'exprimer le tenseur de susceptibilité.

En tenant compte de la distribution de probabilité des axes d'anisotropie, pro-

4. La même fonction de distribution a été utilisée par L. Néel pour le modèle d'ordre directionnel décrivant l'origine de l'anisotropie induite et de sa réorientation à la suite d'un traitement thermomagnétique [108].

4.2. DISPERSION D'ANISOTROPIE EN ANGLE

cédons maintenant à l'intégration du tenseur de susceptibilité dans le cas découplé :

$$\langle \bar{\chi} \rangle = \begin{pmatrix} \chi_s - \frac{\chi_s}{2} \left(1 - \frac{I_1\left(\frac{1}{2\tau^2}\right)}{I_0\left(\frac{1}{2\tau^2}\right)} \right) & 0 \\ 0 & \frac{\chi_s}{2} \left(1 - \frac{I_1\left(\frac{1}{2\tau^2}\right)}{I_0\left(\frac{1}{2\tau^2}\right)} \right) \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

où I_1 désigne la fonction de Bessel modifiée de première espèce. Nous obtenons un tenseur diagonal qui se simplifie dans le cas des faibles dispersions ($0 \leq \tau \ll 1$) :

$$\langle \bar{\chi} \rangle = \underbrace{\begin{pmatrix} \chi_s & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}}_{\text{Uniforme}} + \underbrace{\begin{pmatrix} -\frac{\chi_s}{2}\tau^2 & 0 \\ 0 & \frac{\chi_s}{2}\tau^2 \end{pmatrix}}_{\text{Dispersion}} \quad (4.6)$$

Dans ce cas, le tenseur est la somme d'une susceptibilité mono-domaine et d'une grandeur qui fait chuter χ_{xx} et augmenter χ_{yy} en proportion du terme de dispersion τ . L'expression du tenseur de susceptibilité effective à la suite d'une rotation de l'échantillon s'écrit :

$$\langle \bar{\chi} \rangle = \begin{pmatrix} \chi_s \cos^2(\theta) - \beta \cos(2\theta) & \left(\frac{\chi_s}{2} - \beta\right) \sin(2\theta) \\ \left(\frac{\chi_s}{2} - \beta\right) \sin(2\theta) & \chi_s \sin^2(\theta) + \beta \cos(2\theta) \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

où β intègre le terme de dispersion τ :

$$\beta = \frac{\chi_s}{2} \left(1 - \frac{I_1\left(\frac{1}{2\tau^2}\right)}{I_0\left(\frac{1}{2\tau^2}\right)} \right) \quad (4.8)$$

Une formulation de la susceptibilité en angle est proposée en tenant compte d'une distribution des axes d'anisotropie $\mathfrak{D}(\theta)$, qui est responsable de la dispersion d'aimantation.

4.2.3 Développement d'une mesure spire en rotation sous champ

L'estimation de la dispersion angulaire des échantillons étudiés requiert de mesurer la susceptibilité statique en fonction de l'angle soit à partir d'une mesure statique effectuée au VSM soit à partir d'une mesure dynamique réalisée avec la spire. Il est à noter que la valeur de la partie réelle de la susceptibilité hyperfréquence pour $f = 100$ MHz correspond à la susceptibilité quasi-statique de la couche (χ_i), lorsque la réponse des parois magnétiques est nulle pour cette gamme de fréquence [121]. Le choix d'exploiter les mesures hyperfréquences en spire a été retenu dans le but d'extraire χ_i mais également de mesurer la totalité du spectre hyperfréquence en fonction de l'angle. Pour ce faire, il a été nécessaire d'effectuer une évolution du dispositif de mesure monospire en le dotant d'un support rotatif intégré dans le plan de masse de la spire (cf Figure 4.6). Un goniomètre assure la rotation de l'échantillon de 0 à 360° avec une précision de 0.1°. Une première spire de dimension 18×18 mm² permet la mesure de la susceptibilité de 10 MHz à 3 GHz et une deuxième de dimension 9×9 mm² permet la mesure jusqu'à 6 GHz. La principale source d'incertitude de la mesure est liée au positionnement initial de l'échantillon dans la spire, avec pour souci d'aligner l'axe d'anisotropie avec le champ dynamique. Un jeu de bobines en configuration d'Helmholtz permet de réaliser le blanc sous champ afin de corriger la dérive de la cellule (cf Annexe B) et la mesure de la susceptibilité hyperfréquence sous champ statique jusqu'à 50 Oe. Pour les mesures angulaires, l'échantillon est saturé soit lors de la première mesure uniquement soit pour chaque angle de mesure. Il en résulte un comportement de la susceptibilité tout autre, en raison d'une histoire magnétique différente. Par la suite, les spectres de susceptibilité ont été mesurés en angle avec un pas minimum de 5° et en saturant l'échantillon pour chaque mesure.

4.2.4 Illustration de la dispersion d'aimantation en angle

La Figure 4.7 montre la dépendance en angle de la susceptibilité initiale normalisée pour un échantillon brut de dépôt. Cet échantillon présente une très faible dispersion angulaire puisque χ_i tend vers 0 pour $\theta = 0^\circ$. Dans ce cas, le comportement de $\chi_i(\theta)$ suit essentiellement une loi en $\sin^2(\theta)$ en raison d'un paramètre de dispersion $\tau = 0.04$ très faible. La représentation polaire de la fonction de distribution $\mathfrak{D}(\theta)$ montre bien un caractère fortement anisotrope, en accord avec l'image

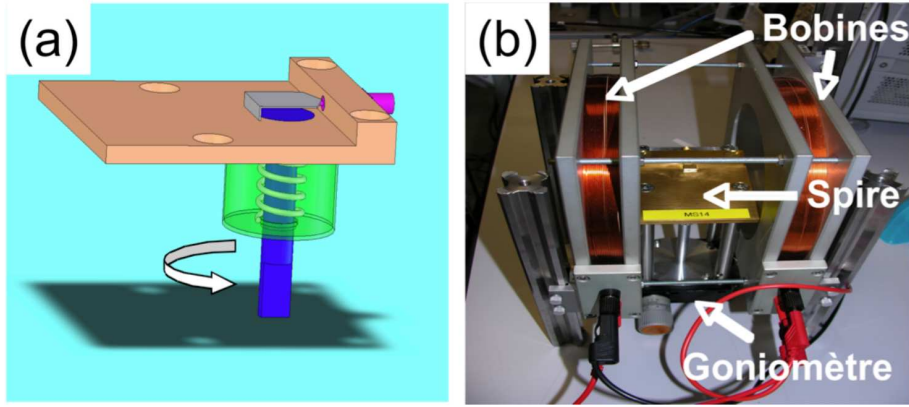


FIGURE 4.6 – **Dispositif de mesure de la susceptibilité hyperfréquence en angle.** Schéma de la spire en rotation dotée d'un goniomètre (a). Photographie du dispositif expérimental avec la spire en rotation $9 \times 9 \text{ mm}^2$, placée au centre des bobines d'Helmholtz.

Kerr de la structure en domaines magnétiques. Une mesure semblable a été réalisée sur le même échantillon après un traitement thermique sous champ transverse. Cette fois, le maximum de susceptibilité correspondant à l'axe de facile aimantation est pour $\theta \approx 110^\circ$ et le minimum de χ_i est non-nul (≈ 0.1). Les résultats expérimentaux sont reproduits à partir de la relation (4.7) avec $\tau = 0.22$. La distribution angulaire conserve un caractère global anisotrope mais présente une légère dispersion autour de la direction de facile aimantation ($\theta + \delta\theta$). Le traitement thermomagnétique engendre une dispersion angulaire de l'aimantation qui pourrait être associée à une rotation non-uniforme ou partielle des axes d'anisotropie dans l'épaisseur [9].

La Figure 4.8 présente la variation de χ_i en fonction de l'angle pour une couche déposée avec les mêmes conditions d'élaboration sur un substrat polymère soit d'épaisseur $12 \text{ }\mu\text{m}$ soit d'épaisseur $50 \text{ }\mu\text{m}$. Les deux échantillons présentent une légère désorientation de l'axe de facile aimantation ($\theta \approx 5^\circ$) mais le film déposé sur un substrat épais montre une forte dispersion. Les paramètres de dispersion valent respectivement $\tau = 0.03$ et $\tau = 0.36$ pour le film déposé sur le substrat $12 \text{ }\mu\text{m}$ et sur le substrat $50 \text{ }\mu\text{m}$. L'épaisseur du substrat est supposée modifier l'état de contrainte et les propriétés magnétiques via le couplage magnéto-élastique. En effet, le fait de déposer une couche mince micronique sur un substrat mou⁵ engendre un gradient

5. Pour un substrat verre infiniment rigide tel que le verre, il n'existe pas de gradient de contrainte dû à la nature du substrat mais uniquement une contrainte interne uniforme.

4.2. DISPERSION D'ANISOTROPIE EN ANGLE

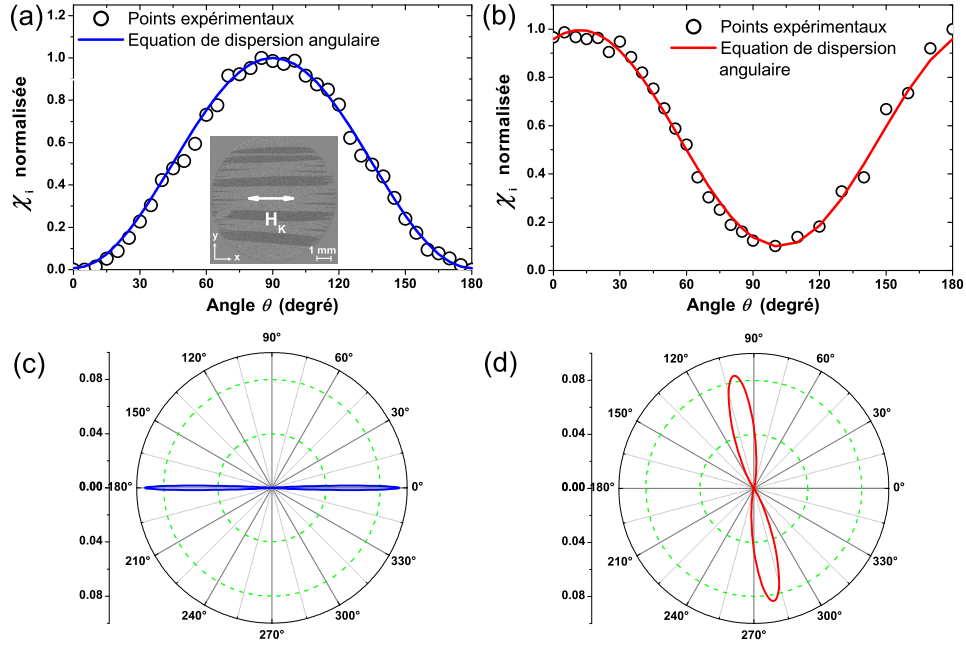


FIGURE 4.7 – **Dépendances en angle de la susceptibilité quasi-statique d'un échantillon brut de dépôt (a) et après traitement thermomagnétique (b).** La couche est saturée entre chaque mesure en angle. L'image Kerr montre la structure en domaines de l'échantillon brut de dépôt à la rémanence. La variation de $\chi_i(\theta)$ est reproduit en appliquant la relation de dispersion angulaire (4.7) avec $\tau = 0.04$ pour l'échantillon non-recuit et $\tau = 0.22$ pour l'échantillon recuit. Les représentations polaires de $\mathfrak{D}(\theta)$ sont également tracées pour les films non-recuit (c) et recuit (d).

de contrainte dans l'épaisseur de plusieurs dizaines de MPa [118]. La rugosité du substrat peut également être à l'origine d'une telle dispersion.

Dans l'hypothèse du macrospin, l'angle de facile aimantation θ se déduit du rapport des susceptibilités initiales mesurées selon les axes x et y :

$$\theta = \tan^{-1} \left(\sqrt{\chi'_{i,y}/\chi'_{i,x}} \right)$$

Les angles de facile aimantation estimés de cette manière prêtent à confusion : $\theta_{12\mu\text{m}} = 5.6^\circ$ et $\theta_{50\mu\text{m}} = 12.1^\circ$. Ce critère indique de manière erronée une désorientation de l'axe de facile aimantation moyen en raison de la dispersion d'aimantation. C'est pourquoi, les mesures en angle sont conseillées pour définir précisément l'axe

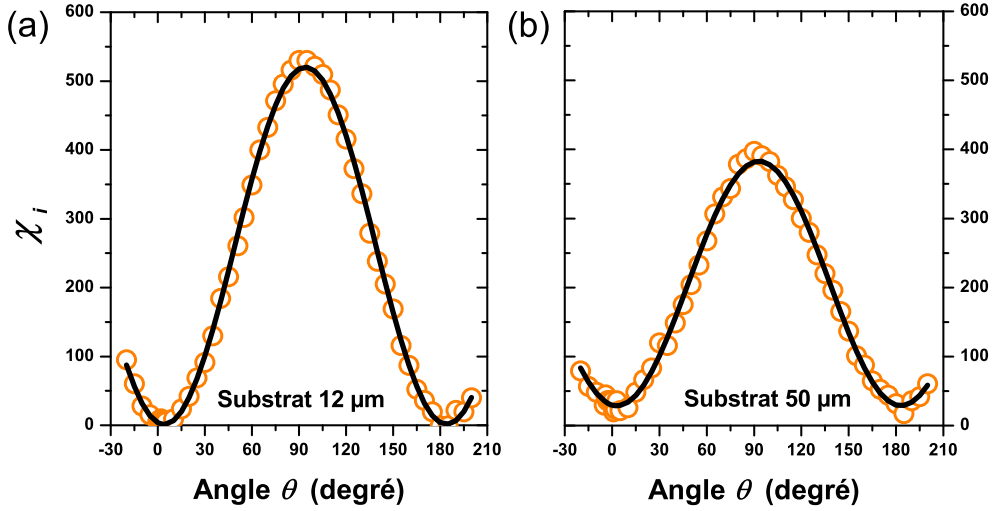


FIGURE 4.8 – Dépendances en angle de la susceptibilité quasi-statique d'un film déposé sur un substrat $12 \mu m$ (a) et un substrat $50 \mu m$ (b). Les résultats expérimentaux sont reproduits à partir de l'équation (4.7) avec $\tau = 0.03$ pour (a) et $\tau = 0.36$ pour (b).

de facile aimantation et quantifier la dispersion des axes de facile aimantation de manière rigoureuse.

Les mesures en angle de la susceptibilité permettent de distinguer l'orientation de l'axe de facile aimantation moyen (θ) de la dispersion des axes de facile aimantation ($\delta\theta$). L'introduction d'un paramètre de dispersion τ est d'un intérêt majeur pour mener une comparaison quantitative des effets de dispersion angulaire liés aux paramètres de pulvérisation, à la nature du substrat et/ou au traitement thermomagnétique. L'intérêt et la faisabilité de cette expérience démontrés, une automatisation du dispositif de mesure, s'accompagnant d'une motorisation du goniomètre, est prévue afin de mesurer un plus grand nombre d'échantillons avec un pas angulaire plus petit.

4.3 Dispersion d'anisotropie en intensité

La notion de dispersion angulaire définie, il est également opportun d'introduire la notion de dispersion d'anisotropie en intensité $\mathfrak{D}(H_K)$, qui est supposée dans l'épaisseur de la couche. Les mesures d'aimantation sous champ statique s'avèrent particulièrement discriminantes pour mettre en exergue les effets liés à $\mathfrak{D}(H_K)$. En effet, il n'est pas rare que les courbes d'aimantation selon l'axe difficile de la couche présentent une forte courbure au voisinage de H_K . À ce titre, la Figure 4.9 reporte les cycles d'hystérésis selon les axes de facile et de difficile aimantation d'une monocouche présentant une très faible dispersion en angle. Le modèle de Stoner-Wohlfarth de rotation cohérente de l'aimantation présente un écart avec la courbe expérimentale m_y [7]. Ce modèle ne fait intervenir qu'une seule valeur de champ d'anisotropie et ne peut donc rendre compte d'une quelconque distribution d'anisotropie en intensité.

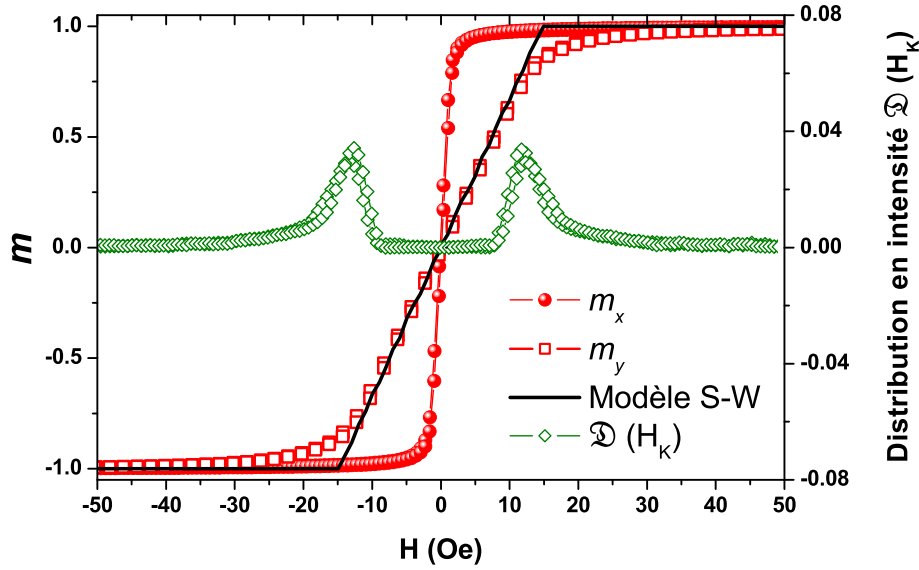


FIGURE 4.9 – Cycles d'hystérésis mesurés selon les axes x et y d'une monocouche possédant une faible dispersion d'anisotropie en angle. La courbe d'aimantation selon l'axe difficile m_y est modélisée à partir du modèle de Stoner-Wohlfarth avec $H_K = 15$ Oe. La distribution $\mathfrak{D}(H_K)$ issue de la dérivée seconde de $m_y(H)$ en appliquant (4.9) est également tracée.

4.4. APPLICATION POUR UNE MONOCOUCHE DÉPOSÉE AU DÉROULÉ SUR UN SUBSTRAT POLYMÈRE

Néanmoins, la courbure de la branche de difficile aimantation est une mesure directe de la dispersion d'aimantation qu'il est judicieux d'exploiter. Lorsque la distribution en angle est négligeable, Barandarian *et al* ont proposé une méthode de détermination de la distribution en intensité de l'anisotropie magnétique notée $\mathfrak{D}(H_K)$ à partir de la courbe d'aimantation mesurée selon l'axe de difficile aimantation [122] :

$$D(H) = -H \frac{d^2 m_y}{dH^2} \quad (4.9)$$

Dans le cas d'une couche parfaitement uniforme, $D(H)$ se présente sous la forme d'un Dirac positionné en $H = H_K$. Dans l'hypothèse d'un matériau magnétique complètement découplé, les axes de facile aimantation se conjuguent avec les axes d'anisotropie. Ainsi la distribution $D(H)$ issue d'une mesure d'aimantation reflète également la distribution d'anisotropie $\mathfrak{D}(H_K)$. La distribution calculée montre un comportement asymétrique avec un maximum pour $H = 12.5$ Oe (cf Figure 4.9). En outre, la valeur du maximum est inférieure à l'anisotropie de la couche $H_K = 17.5$ Oe calculée à partir de la fréquence de résonance (1.19).

4.4 Application pour une monocouche déposée au déroulé sur un substrat polymère

Dans cette section, seuls les échantillons présentant une faible dispersion angulaire sont retenus dans le but de voir uniquement les effets dus à la dispersion en intensité. Dans l'approximation de *n-macrospins* sans couplage d'échange, la susceptibilité magnétique du matériau s'exprime :

$$\langle \chi \rangle = \frac{1}{n} \sum_{z=1}^n \chi_z \quad (4.10)$$

avec χ_z la susceptibilité associée à un macrospin réparti dans l'épaisseur de la couche en z . Seul le comportement de la susceptibilité quasi-statique sera considéré par la suite, soit en angle pour différents champs appliqués soit sous champ pour différents angles de mesure.

4.4.1 Variation en angle de χ_i à H donné

La Figure 4.10 reporte les mesures de susceptibilité initiale χ_i en fonction de l'angle et pour différents champs statiques [123]. Le champ appliqué uniquement selon l'axe x est parallèle à la direction de facile aimantation pour $\theta = 0^\circ$ et perpendiculaire à l'axe de difficile aimantation pour $\theta = 90^\circ$. Comme attendu, les effets dus au champ sont mineurs selon l'axe facile puisque la structure en domaine disparaît pour $H > 2$ Oe, mais sont significatifs selon l'axe difficile pour $H \approx H_K$. L'application du champ engendre un rétrécissement de la largeur à mi-hauteur de la courbe $\chi_i(\theta)$ dont la variation en angle ne suit plus une loi en $\sin^2(\theta)$.

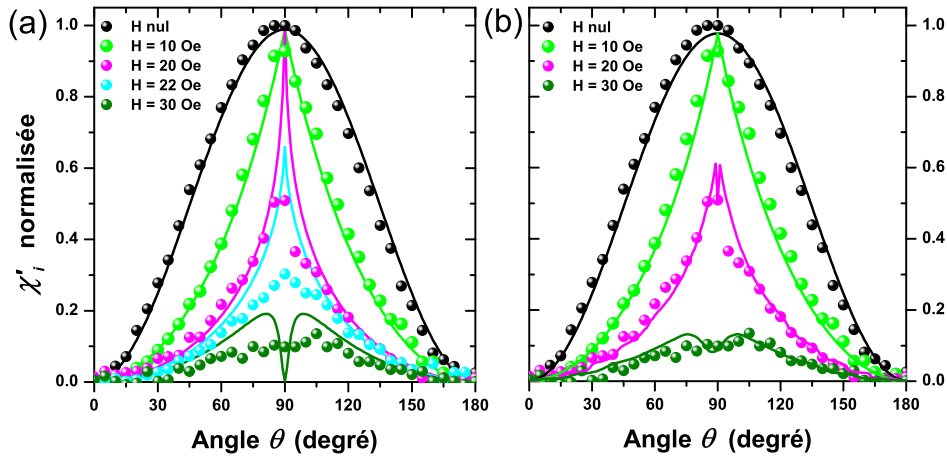


FIGURE 4.10 – Variations en angle de la susceptibilité quasi-statique pour différents champs statiques appliqués jusqu'à 30 Oe. Les résultats simulés sans dispersion en intensité (a) et avec (b) sont comparés aux résultats expérimentaux représentés par des points. La prise en compte de la distribution d'anisotropie en intensité donne un meilleur accord avec les données expérimentales.

À partir de l'équation (4.3) et pour $H_K = 22$ Oe, le comportement de $\chi_i(\theta)$ pour différents champs est tracé et mime parfaitement le comportement expérimental à la rémanence. Dès que le champ appliqué est supérieur à H_c , des divergences apparaissent en raison d'une chute de χ_i plus élevée que celle prédite (cf Figure 4.10

4.4. APPLICATION POUR UNE MONOCOUCHE DÉPOSÉE AU DÉROULÉ SUR UN SUBSTRAT POLYMÈRE

(a)). Une seconde modélisation a été réalisée en tenant compte cette fois-ci de la distribution d'anisotropie en intensité expérimentale déduite du VSM. **Les résultats simulés avec $\mathfrak{D}(H_K)$ reproduisent la dépendance en angle de χ_i , notamment pour des champs proches du champ d'anisotropie de l'échantillon.**

4.4.2 Variation sous champ de χ_i à θ donné

Analyser le comportement sous champ de la susceptibilité initiale est une méthode d'intérêt puisqu'elle exacerbe les effets dus à la dispersion d'anisotropie magnétique, notamment au voisinage du champ d'anisotropie moyen de la couche. Pour déterminer la susceptibilité transverse $\chi_i(\pi/2)$ (et longitudinale $\chi_i(0)$) d'une couche magnétique d'anisotropie selon x , le champ dynamique est appliqué le long de x (et y) et le champ statique H le long de y (et x). Les points expérimentaux de la susceptibilité longitudinale et transverse sous champ statique sont représentés sur la Figure 4.11.

La susceptibilité longitudinale présente une dépendance linéaire sous champ comme pour la fréquence de résonance. Pour des champs faibles, l'inverse de la susceptibilité $\chi_i(\pi/2)$ tend vers l'infini puis tend à s'annuler pour un champ proche du champ d'anisotropie de la couche mince. La variation de la susceptibilité initiale au voisinage de H_K est une signature de la dispersion d'anisotropie en intensité. Une fois, l'aimantation alignée le long du champ appliqué, $\chi_i(\pi/2)$ suit un comportement linéaire en champ et parallèle à $\chi_i(0)$. Les équations de Kittel prédisent le comportement sous champ de la fréquence de résonance en fonction de H , H_K et M_s [54]. Il en est de même pour la susceptibilité initiale dont les expressions sont dérivées du modèle de Stoner-Wohlfarth [7, 9, 120] :

$$1/\chi_i(0) = \frac{H + H_K}{M_s}, \quad (4.11)$$

$$1/\chi_i(\pi/2) = H_K \left(\frac{H_K^2 - H^2}{M_s H^2} \right) \quad H \leq H_K, \quad (4.12)$$

$$1/\chi_i(\pi/2) = \frac{H - H_K}{M_s} \quad H \geq H_K. \quad (4.13)$$

Les résultats théoriques calculés avec $4\pi M_s = 10$ kGauss et $H_K = 17.5$ Oe en utilisant les équations (4.11-4.13) sont tracés sur la Figure 4.11. Ils sont en parfait accord avec les points expérimentaux lorsque l'échantillon est saturé : $\chi_i(0)$ pour $H > H_c$

4.4. APPLICATION POUR UNE MONOCOUCHE DÉPOSÉE AU DÉROULÉ SUR UN SUBSTRAT POLYMÈRE

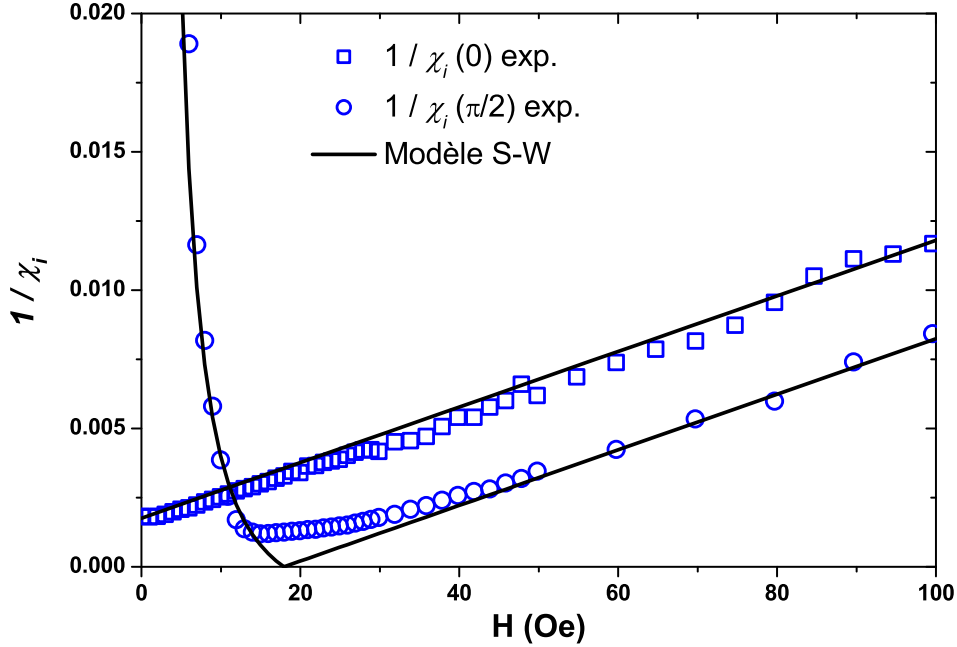


FIGURE 4.11 – Comportements sous champ de la susceptibilité quasi-statique longitudinale et transverse. La susceptibilité théorique calculée à partir des équations (4.11 - 4.13) avec $H_K = 17.5$ Oe est tracée en noir.

et $\chi_i(\pi/2)$ pour $H > 2H_K$. Cependant considérer un macrospin avec une unique valeur d'anisotropie magnétique est insuffisant pour mimer la susceptibilité transverse au voisinage de H_K , pour lequel la dispersion d'anisotropie est prépondérante par rapport à $(H_K - H)$. Le modèle prédit une susceptibilité nulle pour $H = H_K$ au contraire des points expérimentaux. Pour preuve de la limite de l'approche macrospin, deux valeurs de champ d'anisotropie ont été utilisées pour modéliser en statique le cycle d'hystérésis ($H_K = 15$ Oe) et en dynamique la susceptibilité initiale sous champ ($H_K = 17.5$ Oe).

En Section 4.4.1, nous avons montré tout l'intérêt d'intégrer une distribution d'anisotropie en intensité lors du calcul de la susceptibilité initiale en fonction de l'angle. De la même manière, $\mathfrak{D}(H_K)$ doit être incluse dans le calcul de la susceptibilité sous champ. La susceptibilité initiale est définie comme la moyenne des sus-

4.4. APPLICATION POUR UNE MONOCOUCHE DÉPOSÉE AU DÉROULÉ SUR UN SUBSTRAT POLYMÈRE

ceptibilités réparties dans l'épaisseur de la couche, en référence à l'équation (4.10). C'est pourquoi, la distribution d'anisotropie $\mathfrak{D}(H_K)$ extraite de la courbe de difficile aimantation doit être reformulée en un gradient d'anisotropie en z . Pour cela, une distribution continue, monotone et croissante est supposée de manière à obtenir $H_K(z)$ à partir de $\mathfrak{D}(H_K)$ via la relation de conversion suivante :

$$z(H) = t \frac{\int_0^t \mathfrak{D}(x) dx}{\int_0^\infty \mathfrak{D}(x) dx} \quad (4.14)$$

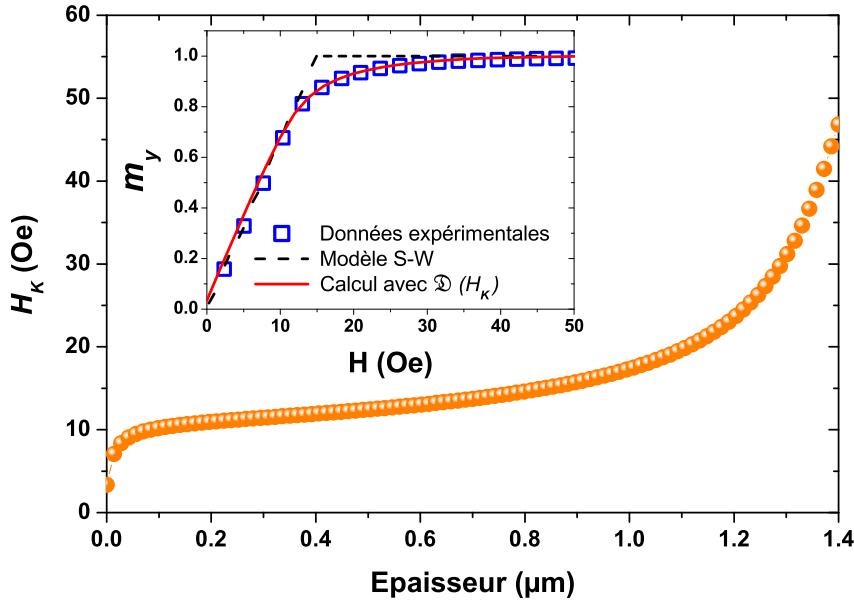


FIGURE 4.12 – **Gradient d'anisotropie dans l'épaisseur de la couche.** Comme attendu, la courbe d'aimantation simulée avec la distribution expérimentale $H_K(z)$ reproduit parfaitement la courbure du cycle au contraire du modèle S-W avec une seule anisotropie.

Sur la Figure 4.12, la distribution $H_K(z)$ présente une variation fortement asymétrique avec un minimum au niveau de l'interface verre/ferromagnétique ($H_K = 4$ Oe en $z = 0$) et un maximum au niveau de la surface de la couche mince ($H_K = 60$ Oe en $z = t$). La valeur moyenne du champ d'anisotropie $\langle H_K \rangle = 14$ Oe est légèrement inférieure au champ d'anisotropie estimé $H_K = 18$ Oe. Il est intéressant de noter que la distribution $H_K(z)$ présente de grandes similitudes avec le profil de champs

4.4. APPLICATION POUR UNE MONOCOUCHE DÉPOSÉE AU DÉROULÉ SUR UN SUBSTRAT POLYMÈRE

d'anisotropie déterminé à partir du dépôt statique (cf Figure 4.4). La courbe de difficile aimantation simulée avec le gradient d'anisotropie expérimental reproduit bien évidemment la branche d'aimantation mesurée contrairement au modèle S-W avec une seule anisotropie.

La Figure 4.13 présente les résultats simulés en tenant compte de $H_K(z)$ et d'un échange faible. Ces derniers montrent un excellent accord avec les résultats expérimentaux, notamment pour la susceptibilité transverse à proximité de H_K . Une légère désorientation de l'axe de facile aimantation moyen ($\theta_K = 2^\circ$) a été prise en compte dans le calcul. Considérer un angle de désorientation légèrement plus élevé permettrait d'améliorer la modélisation de $1/\chi_i(\pi/2)$ à champs faibles.

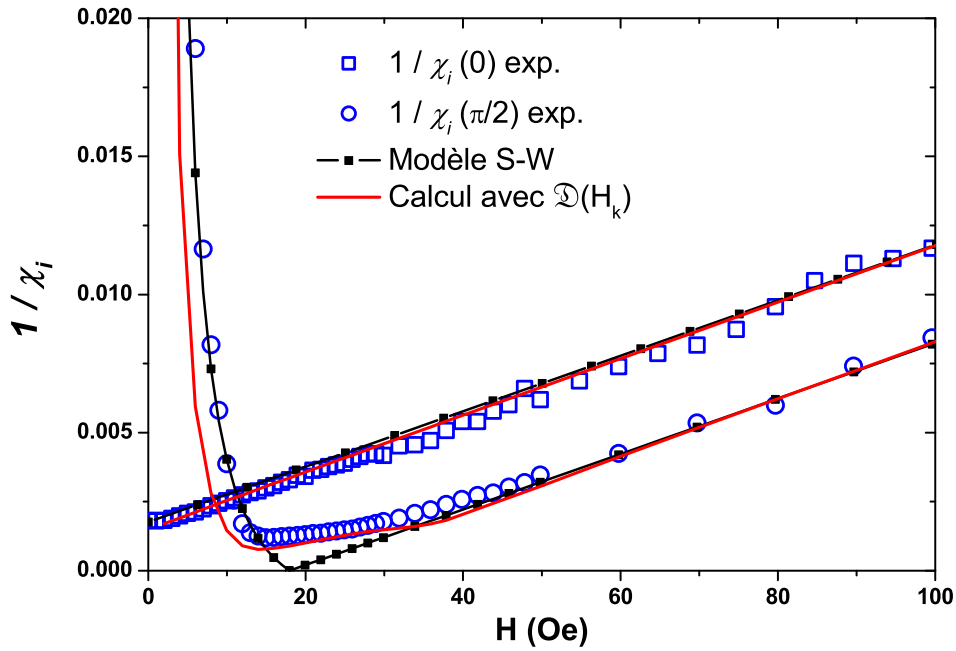


FIGURE 4.13 – Comportements sous champ de la susceptibilité quasi-statique longitudinale et transverse. Les lignes en trait plein représentent les résultats générés avec la dispersion d'anisotropie expérimentale $H_K(z)$. Sont également reportés en trait noir les résultats théoriques pour un macrospin.

La prise en compte de la distribution d'anisotropie permet d'affiner la modélisation de la susceptibilité quasi-statique en angle et sous champ.

4.5 Conclusion

Du fait du procédé et des conditions d'élaboration, les couches minces présentent une désorientation de l'axe de facile aimantation et/ou une dispersion d'aimantation. La volonté d'optimiser les propriétés magnétiques de nos matériaux a conduit à isoler les sources de dispersion et à proposer une méthode pour évaluer la distribution d'aimantation en angle et en intensité. Pour cela, une décomposition de la réponse magnétique d'une couche magnétique en *n-macrospins* sans interaction d'échange entre eux a été supposée dans le cas où $t > \delta_B$ et *a fortiori* $t \gg \delta_{ex}$. De plus, le dispositif de mesure spire en rotation a été spécifiquement développé dans ce but.

Ces travaux ont montré que les mesures en angle sont précieuses pour faire la distinction entre une désorientation de l'axe de facile aimantation et une dispersion d'aimantation. Cet aspect est notamment crucial pour un film ayant subi une réorientation de son axe d'anisotropie par un traitement thermique sous champ ou sous contrainte. L'introduction du terme de dispersion τ est un paramètre pertinent pour comparer quantitativement la dispersion d'aimantation en fonction des conditions d'élaboration, de réorientation de l'anisotropie magnétique ... De la même manière, une méthode de distribution d'anisotropie en intensité a été rappelée et utilisée.

À titre d'application, la distribution d'anisotropie expérimentale a été prise en compte dans le calcul de la susceptibilité initiale d'une couche mince déposée au déroulé sur un substrat polymère. Les résultats simulés avec $\mathfrak{D}(H_K)$ miment convenablement le comportement expérimental de χ_i en angle et sous champ. Il serait néanmoins intéressant de poursuivre cet effort de recherche en intégrant la dispersion en angle dans le calcul de la susceptibilité. Mais dès lors se pose le problème de la convolution entre la distribution d'anisotropie en angle et en intensité. Dans le cas des couches microniques avec une faible dispersion, l'approche *n-macrospins* montre des résultats probants. Néanmoins, l'introduction de l'énergie d'échange sera nécessaire pour modéliser les couches plus fines ou présentant une forte dispersion d'aimantation.

Chapitre 5

Prise en compte de l'énergie d'échange

Sommaire

5.1	Intérêt de l'approche micromagnétique	132
5.2	Modèle micromagnétique <i>1D-Spiral</i>	134
5.3	Élaboration spécifique de couches magnétiques inhomogènes	147
5.4	Étude d'une bicouche à anisotropies croisées	150
5.5	Application du modèle <i>1D-Spiral</i> pour une multicouche	175
5.6	Discussion et Perspectives	178

Lorsque les couches minces sont d'épaisseur moindre ou présentent une forte dispersion d'aimantation, la prise en compte de l'énergie d'échange est requise dans le but de modéliser leur comportement magnétique. Ainsi un modèle micromagnétique unidimensionnel nommé 1D-Spiral, intégrant les énergies magnétiques d'intérêt dont l'échange, a été développé afin de générer le profil statique de l'aimantation et de simuler la dynamique de l'aimantation. Des bicouches avec des axes d'anisotropie magnétique croisés à 90° ont été spécifiquement élaborées dans le but d'imposer une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur connue. De plus, les bicouches ont été déposées en statique sur un substrat en verre afin de réduire les sources de dispersion liées au procédé. Ces bicouches ont servi de cas d'école pour valider le modèle 1D-Spiral et pour étendre le domaine d'application de l'aimantation dynamiquement couplée aux couches magnétiques inhomogènes. Une attention toute particulière est portée sur la structure en domaines magnétiques engendrée dans ces systèmes non-uniformes. Des expériences par spectrométrie de précession ont été menées dans le but de sonder le profil d'aimantation dans l'épaisseur et de le comparer au profil simulé à partir des mesures magnétiques statiques et dynamiques. Pour conclure, une application du modèle 1D-Spiral pour une multicouche à anisotropies croisées est réalisée.

5.1 Intérêt de l'approche micromagnétique

Les premiers modèles décrivant la réponse du matériau à une excitation magnétique statique et dynamique sont le modèle de Stoner-Wohlfarth pour un macrospin et l'équation de précession de l'aimantation (cf Chapitre I). Le modèle S-W a pour limite de décrire un matériau magnétique uniforme tel un macrospin. La théorie du micromagnétisme a été introduite par Brown dans les années 40 afin d'interpréter le comportement non-linéaire des matériaux magnétiques [124]. En effet, la relation entre l'aimantation et le champ magnétique adopte un comportement non-linéaire pour un matériau ferromagnétique : $M \neq \chi H$. Brown a proposé une approche énergétique en tenant compte des contributions prépondérantes dans le but de reproduire la distribution d'aimantation dans le matériau. La théorie du micromagnétisme a été validée à la suite du franc succès qu'elle a rencontré au sujet des parois de domaine : la minimisation de l'énergie totale composée des énergies d'échange, d'anisotropie et dipolaire pour une couche mince infinie a permis de distinguer la paroi de Bloch et la paroi de Néel [125]. De nombreuses intercomparaisons entre les résultats expérimentaux et simulés ont garanti la validation des modèles micromagnétiques 1D puis 2D [125].

La validation des modèles 3D est plus complexe puisqu'elle nécessite de connaître précisément la distribution d'aimantation volumique de l'échantillon. Les techniques d'imagerie magnéto-optique ou de Bitter renseignent uniquement sur la structure en domaines magnétiques surfacique mais aucunement volumique. Pour cela, il faut avoir recours à des techniques disponibles sur les grands instruments telles que la diffusion par résonance nucléaire d'un rayonnement synchrotron [126] ou la dépolarisation neutronique [127]. C'est pourquoi la susceptibilité hyperfréquence est introduite comme nouvelle observable pour sonder la distribution d'aimantation en volume afin de conforter les modèles 3D, et *a fortiori* 1D et 2D. La possibilité de cartographier la distribution d'aimantation en volume via la susceptibilité et des différents modes d'excitation existe mais s'avère peu trivial dans de nombreux cas. Ainsi nous nous sommes efforcés de développer un modèle unidimensionnel *1D-Spiral* représentatif d'une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur et uniforme dans le plan de la couche. Ce modèle micromagnétique a été développé en association avec F. Duverger et A. Thiaville.

5.1. INTÉRÊT DE L'APPROCHE MICROMAGNÉTIQUE

Adopter une approche micromagnétique s'est montrée fructueuse à de nombreuses reprises pour :

- la modélisation du profil d'aimantation de deux couches ferromagnétiques séparées par un espaceur antiferromagnétique [128], de deux couches ferromagnétiques avec une couche plus dure que l'autre [129].
- la simulation de la susceptibilité hyperfréquence de bicouches avec une anisotropie planaire et une hors du plan [130], de couches magnétiques avec des domaines en ruban [131].

Considérer uniquement des macrospins découplés est une approximation raisonnable lorsque l'épaisseur de la couche est très supérieure aux longueurs magnétiques caractéristiques et lorsque la distribution d'anisotropie est faible. Formuler cette hypothèse a permis de modéliser le comportement sous champ et en angle de la susceptibilité initiale à partir d'une distribution d'anisotropie en intensité. Néanmoins, dans le cas d'une forte dispersion d'aimantation, l'énergie d'échange qui couple les spins doit être prise en compte lors de la modélisation des couches minces inhomogènes. Au vu des possibilités offertes par la théorie du micromagnétisme, le développement d'un modèle unidimensionnel s'est avéré fondamental pour affiner la modélisation du comportement magnétique en statique et en dynamique de couches minces magnétiques inhomogènes.

5.2 Modèle micromagnétique 1D-Spiral

5.2.1 Introduction de l'énergie d'échange

Cette énergie correspond à l'interaction spin-spin entre les premiers et seconds voisins essentiellement. Le signe de la constante d'échange du matériau A (exprimée en J/m) caractérise la nature de l'interaction. Ainsi une constante d'échange positive tend à aligner les spins les uns par rapport aux autres : le matériau est dit ferromagnétique et la configuration énergétique est minimale. Dans le cas contraire, le matériau est dit antiferromagnétique. À titre d'exemple, A vaut 2×10^{-11} J/m pour le fer pur et 1.5×10^{-11} J/m pour le cobalt cristallin. La densité d'énergie d'échange s'écrit :

$$G_{ex} = \frac{dE_{ex}}{dV} = \frac{A}{M_s^2} \left(\vec{\nabla} \vec{M} \right)^2, \quad (5.1)$$

où E_{ex} est l'énergie d'échange exprimée en (J). L'énergie d'échange est supposée isotrope puisqu'une seule valeur de A factorise chaque terme du gradient. Le champ d'échange associé s'écrit :

$$\vec{H}_{ex} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\delta G_{ex}}{\delta \vec{M}} = \frac{2A}{\mu_0 M_s^2} \vec{\Delta} \vec{M}. \quad (5.2)$$

À ce stade, le paramètre de Curie-Weiss peut être défini : $\lambda a^2 = \frac{2A}{\mu_0 M_s^2}$, avec a le paramètre de « maille ».

5.2.2 Les équations micromagnétiques

L'énergie totale du système s'obtient par addition des différentes densités d'énergie mentionnées dans la Table 5.1 afin de les intégrer dans le volume fini Ω_0 :

$$E_t = \int_{\Omega_0} (G_{ex} + G_K + G_z + G_d) dV \quad (5.3)$$

Une fois l'énergie micromagnétique du système définie, nous procédons au calcul de la réponse de l'aimantation à une excitation statique et dynamique.

En statique, l'aimantation est calculée en résolvant l'équation de Brown [124], qui se déduit de l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert :

$$\frac{\partial \vec{M}}{\partial t} = -\gamma\mu_0 \vec{M} \times \vec{H}_\Sigma + \frac{\alpha}{\|\vec{M}\|} \vec{M} \times \frac{\partial \vec{M}}{\partial t} \quad (5.4)$$

En statique, la dérivée temporelle $\frac{\partial \vec{M}}{\partial t}$ est nulle. Nous obtenons ainsi l'équation de Brown qui régit la condition d'équilibre :

$$\vec{M}_0 \times \vec{H}_\Sigma = \vec{0} \quad (5.5)$$

$$\vec{M}_0 \times (\vec{H}_{ex} + \vec{H}_K + \underbrace{\vec{H}_0 - \bar{N}\vec{M}_0}_{\vec{H}_d}) = \vec{0} \quad (5.6)$$

avec \vec{M}_0 l'aimantation statique. Le champ effectif \vec{H}_Σ se compose des différents champs mentionnés dans la Table 5.1. La situation d'équilibre résulte de la minimisation de l'énergie totale du système. Il est dès lors possible de déterminer le profil d'aimantation $\theta(z)$ et la courbe d'aimantation sous champ $M(H)$.

En dynamique, la réponse de l'aimantation à un champ magnétique hyperfréquence est calculée en résolvant l'équation de Landau-Lifshitz-Gilbert et en tenant compte du profil d'aimantation statique.

	Densité d'énergie G	Champ \vec{H}
Échange	$G_{ex} = \frac{A}{M_s^2} (\vec{\nabla} \vec{M})^2$	$\vec{H}_{ex} = \frac{2A}{\mu_0 M_s^2} \vec{\Delta} \vec{M}$
Anisotropie	$G_K = K \left(1 - \frac{(\vec{n} \cdot \vec{M})^2}{M_s^2} \right)$	$\vec{H}_K = \frac{2K}{\mu_0 M_s^2} (\vec{n} \cdot \vec{M}) \vec{n}$
Zeeman	$G_z = -\mu_0 \cdot (\vec{H}_0 \cdot \vec{M})$	\vec{H}_0
Dipolaire	$G_K = -\frac{\mu_0}{2} \vec{M} \cdot \vec{H}_d$	$\vec{H}_d = -\bar{N} \vec{M}$

TABLE 5.1 – Récapitulatif des densités d'énergie et des champs associés pris en compte dans le modèle micromagnétique unidimensionnel.

5.2.3 Résolution du modèle 1D-Spiral

Soit une couche mince ferromagnétique infinie dans le plan, étudiée dans le régime non-linéaire ($T \ll T_c$). Considérons le cas d'une distribution de l'anisotropie magnétique en angle et en intensité dans l'épaisseur de la couche $\mathfrak{D}(\theta_K(z), K(z))$, qui impose un profil d'aimantation $\theta(z)$. L'anisotropie et l'aimantation sont supposées uniformes dans le plan de la couche (xy). La Figure 5.1 montre le cas canonique d'une bicouche à anisotropies croisées qui se compose d'une 1^{ère} couche d'épaisseur t_1 , d'anisotropie K_1 orientée selon x ($\theta_{K1} = 0^\circ$) et d'une 2^{ème} couche d'épaisseur t_2 , d'anisotropie K_2 alignée selon y ($\theta_{K2} = 90^\circ$).

5.2.3.1 Résolution en statique

Définissons dans le plan (xy) le vecteur aimantation \vec{M} et le champ statique appliqué \vec{H}_0 (d'angle θ_H et d'intensité H_0) :

$$\vec{M} = M_s \cdot \begin{pmatrix} \cos(\theta(z)) \\ \sin(\theta(z)) \\ 0 \end{pmatrix}, \quad \vec{H}_0 = H_0 \cdot \begin{pmatrix} \cos(\theta_H) \\ \sin(\theta_H) \\ 0 \end{pmatrix} \quad (5.7)$$

Seuls les processus d'aimantation sous champs faibles sont étudiés comme $H_0 \ll M_s$. La géométrie considérée impose une variation de l'aimantation uniquement selon z , pour laquelle l'énergie magnéto-statique sera approximée au 1^{er} ordre : $N_z = 1$ et $N_x = N_y = 0$. Il est nécessaire de préciser que le calcul exact du champ dipolaire d'une couche mince de taille finie et d'aimantation non-uniforme dans l'épaisseur est très complexe.

Appliquons les vecteurs \vec{M} et \vec{H}_0 aux expressions du champ d'échange, d'anisotropie, de Zeeman et dipolaire (cf Table 5.1). En statique, l'énergie micromagnétique totale par unité de surface et sous champ s'écrit :

$$E_t = \int_0^t \left[A \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 + K \sin^2(\theta - \theta_K) - \mu_0 M_s H_0 \cos(\theta - \theta_H) \right] dz, \quad (5.8)$$

avec θ , θ_K et K des fonctions de pas en z . Le terme magnéto-strictif n'est pas explicitement détaillé dans cette équation mais celui-ci peut-être intégrer dans le

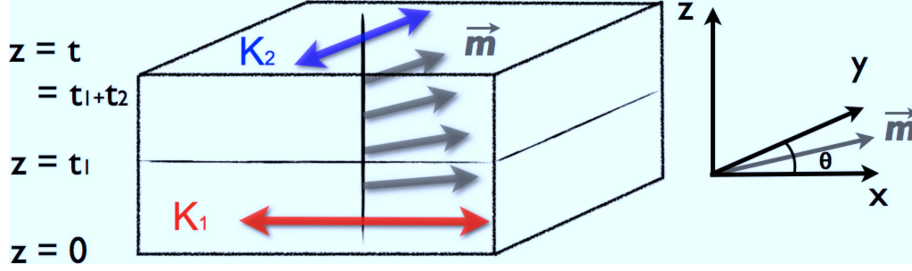


FIGURE 5.1 – Schéma représentant la distribution des axes d'anisotropie dans l'épaisseur. Le cas le plus simple d'une bicouche avec deux anisotropies croisées à 90° (K_1 en rouge et K_2 en bleu) est représenté où l'aimantation décrit une spirale dans l'épaisseur (flèche grise).

terme d'anisotropie qui sera représentatif d'une anisotropie effective [132]. Il nous faut maintenant résoudre l'équation de Brown ($\vec{M} \times \vec{H}_\Sigma = 0$) qui s'exprime dans notre cas :

$$\begin{pmatrix} M_s H_z \sin(\theta(y)) \\ -M_s H_z \cos(\theta(y)) \\ M_s H_y \cos(\theta(y)) - H_x \sin(\theta(y)) \end{pmatrix} = 0, \quad (5.9)$$

avec $\vec{H}_\Sigma = \vec{H}_K + \vec{H}_{ex} + \vec{H}_0 - \bar{N}\vec{M}_0$. Le champ dipolaire en statique est nul puisque l'aimantation est dans le plan (xy) et que $N_x = N_y = 0$. L'expression du champ effectif peut s'effectuer à partir de $\vec{H}_\Sigma = \vec{\nabla}_{\vec{M}}(E)$. Étant donné que le nombre de termes énergétiques est relativement faible, l'utilisation de l'équation d'Euler-Lagrange a été privilégiée pour obtenir l'équation micromagnétique :

$$\frac{\partial E_t}{\partial \theta} - \frac{\partial}{\partial z} \left(\frac{\partial E_t}{\partial \left(\frac{\partial \theta}{\partial z} \right)} \right) = 0, \quad (5.10)$$

dont l'expression de E_t est donnée par (5.8). L'expression micromagnétique en statique s'exprime :

$$2A \frac{d^2 \theta}{dz^2} - K \sin(2\theta - 2\theta_K) - \mu_0 M_s H_0 \sin(\theta - \theta_H) = 0. \quad (5.11)$$

Les équations se présentent sous forme d'équations différentielles non-linéaires du second ordre dont la résolution requiert d'établir deux conditions aux bords. Les conditions aux limites imposent le vecteur aimantation et son gradient sur les bords.

Ainsi elles influent fortement sur la nature des solutions obtenues et sur la distribution spatiale de l'aimantation qui en découle. Dans cette étude, le gradient d'aimantation est imposé de manière arbitraire nul aux bords, ce qui consiste à laisser l'aimantation libre à la surface¹ :

$$\frac{d\theta}{dz} = 0 \quad \text{avec } z = 0, t \quad (5.12)$$

et une continuité à l'interface interne :

$$\theta \text{ et } \frac{d\theta}{dz} \text{ continus en } z = t_1. \quad (5.13)$$

La résolution numérique de l'équation différentielle (5.11) s'opère par la méthode de relaxation mais pourrait tout aussi bien être réalisée par d'autres méthodes d'analyse numérique telles que Runge-Kutta ou Numerov couplées avec une méthode de tir. La méthode de relaxation effectue une recherche par itération successive du minimum minimorum d'énergie². Connaissant le profil d'aimantation $\theta(z)$, il est possible de tracer les courbes d'aimantation $M(H)$.

5.2.3.2 Résolution en dynamique

Cette fois, le système magnétique non-homogène est excitée par un champ dynamique alternatif infinitésimal et uniforme dans le plan (xy) ³. Il sera également possible d'appliquer un champ magnétique statique planaire. L'observable de la distribution d'aimantation dans l'épaisseur est la susceptibilité magnétique dynamique prise dans la gamme du MHz au GHz. La dépendance en temps de l'aimantation réduite \vec{m} s'exprime :

$$\vec{m} = \begin{pmatrix} \cos(\theta_0(z) + u(z, t)) \cos(v(z, t)) \\ \sin(\theta_0(z) + u(z, t)) \cos(v(z, t)) \\ \sin(v) \end{pmatrix} \quad (5.14)$$

1. Des conditions de pinning pourraient être posées et résolues de la même manière.

2. Dans le cas d'une couche mince d'épaisseur infinie, cette méthode de résolution ne peut distinguer le cas d'une paroi de Bloch dans l'épaisseur d'une aimantation uniforme puisque les énergies sont strictement équivalentes.

3. Seuls les modes uniformes dans le plan de la couche seront calculés.

On pose $\theta(z, t) = \theta_0(z) + u(z, t)$. Soit $\theta_0(z)$ l'angle de l'aimantation statique en fonction de l'épaisseur. Les composantes u et v sont respectivement l'angle de rotation dans le plan et l'angle de rotation hors du plan.

La dynamique de l'aimantation est décrite par l'équation de Landau-Lishitz-Gilbert :

$$\frac{\partial \vec{m}}{\partial t} = -\bar{\gamma} \left(\vec{m} \times \vec{H} \right) + \alpha \left(\vec{m} \times \frac{\partial \vec{m}}{\partial t} \right). \quad (5.15)$$

avec $\bar{\gamma} = \gamma\mu_0$. En remplaçant \vec{m} par (5.14) dans (5.15), le problème se présente sous forme de 3 équations différentielles qui se combinent de manière à n'en former plus que deux :

$$\begin{cases} \frac{du}{dt} \cos(v) + \alpha \frac{dv}{dt} &= \bar{\gamma} [-\sin(\theta) \sin(v) H_u + \cos(v) H_v + \cos(\theta) \sin(v) H_w] \\ \frac{dv}{dt} \cos(v) - \alpha \frac{du}{dt} &= \bar{\gamma} [\sin(\theta) H_w - \cos(\theta) H_u] \end{cases}$$

Afin de résoudre ce système d'équations différentielles, nous devons linéariser LLG. La relation du champ statique avec l'aimantation statique est non-linéaire mais est supposée linéaire pour l'aimantation dynamique de manière à considérer \vec{m} comme une perturbation de \vec{M}_0 . En effet, les composantes u et v sont très petites en raison de la faible excitation magnétique h . Linéariser LLG revient donc à poser : $|h| \ll 1$ et $|u|, |v| \ll 1$.

$$\begin{cases} \frac{du}{dt} &= \bar{\gamma} H_v - \alpha \frac{dv}{dt}, \\ \frac{dv}{dt} &= -\bar{\gamma} H_u + \alpha \frac{du}{dt}. \end{cases} \quad (5.16)$$

Il nous reste à déterminer les champs locaux H_u et H_v . De la même manière qu'en statique, l'énergie totale se compose de l'énergie d'échange, d'anisotropie, de Zeeman et dipolaire (cf Table 5.1) [133, 134]. L'énergie micromagnétique d'un matériau ma-

gnétique sous champ statique \vec{H}_0 et excitée par un champ dynamique \vec{h} s'exprime :

$$\begin{aligned}
 E_t = & \int_0^t \left\{ A \left[\cos^2 v \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 + \left(\frac{dv}{dz} \right)^2 \right] - K \cos^2(\theta - \theta_K) \cos^2 v + \frac{\mu_0 M_s^2}{2} \sin^2 v \right. \\
 & \left. - \mu_0 M_s H_0 \cos v \cos(\theta - \theta_H) - \mu_0 M_s \cos v (h_x \cos \theta + h_y \sin \theta) \right\} dz \quad (5.17)
 \end{aligned}$$

Les expressions de H_u et H_v résultent de l'énergie micromagnétique en appliquant l'équation d'Euler-Lagrange :

$$\left\{ \begin{aligned}
 H_u &= \frac{2A}{\mu_0 M_s} \frac{d^2 u}{dz^2} + u \left(-\frac{2K}{\mu_0 M_s} \cos 2(\theta_0 - \theta_K) - H_0 \cos(\theta_0 - \theta_H) \right) \\
 &+ (h_y \cos \theta_0 - h_x \sin \theta_0) \\
 H_v &= \frac{2A}{\mu_0 M_s} \frac{d^2 v}{dz^2} + v \left(\frac{2A}{\mu_0 M_s} \left(\frac{d\theta_0}{dz} \right)^2 - \frac{2K}{\mu_0 M_s} \cos^2(\theta_0 - \theta_K) - H_0 \cos(\theta_0 - \theta_H) - M_s \right)
 \end{aligned} \right.$$

Le système linéaire est résolu par décomposition harmonique en posant :

$$h_x \equiv X e^{-i\omega t}, \quad h_y \equiv Y e^{-i\omega t}, \quad u(z, t) \equiv U(z) e^{-i\omega t}, \quad v(z, t) \equiv V(z) e^{-i\omega t},$$

de manière à obtenir deux équations couplées en u et v :

$$\left\{ \begin{aligned}
 \frac{2A}{\mu_0 M_s} \frac{d^2 U}{dz^2} &= \frac{i\omega}{\bar{\gamma}} V(z) - (h_y \cos \theta_0 - h_x \sin \theta_0) - U(z) \left(\frac{i\omega\alpha}{\bar{\gamma}} + C_1(z) \right), \\
 \frac{2A}{\mu_0 M_s} \frac{d^2 V}{dz^2} &= -\frac{i\omega}{\bar{\gamma}} U(z) - V(z) \left(\frac{i\omega\alpha}{\bar{\gamma}} + C_2(z) \right),
 \end{aligned} \right. \quad (5.18)$$

avec

$$\left\{ \begin{aligned}
 C_1(z) &= -\frac{2K}{\mu_0 M_s} \cos 2(\theta_0 - \theta_K) - H_0 \cos(\theta_0 - \theta_H), \\
 C_2(z) &= \frac{2A}{\mu_0 M_s} \left(\frac{d\theta_0}{dz} \right)^2 - \frac{2K}{\mu_0 M_s} \cos^2(\theta_0 - \theta_K) - H_0 \cos(\theta_0 - \theta_H) - M_s.
 \end{aligned} \right.$$

La résolution de (5.18) requiert de découpler le système en effectuant des approximations au 1^{er} ordre : $2K \ll \mu_0 M_s$, $H_0 \ll \mu_0 M_s$ et $\left(\frac{d\theta_0}{dz} \right)^2 \ll 1$. Il en résulte

$C_1 \ll 1$ et $C_2 = -M_s$. On suppose également que l'accélération de la déviation v est négligeable $\left(\frac{d^2V}{dz^2} \ll 1\right)$ comme l'aimantation est incitée à rester dans le plan (xy) par le champ dipolaire. On peut ainsi exprimer V en fonction de U :

$$V(z) = \frac{i\Omega U(z)}{1 - i\alpha\Omega} \text{ avec } \Omega = \frac{\omega}{\bar{\gamma}M_s} = \frac{\omega}{\gamma\mu_0 M_s}, \quad (5.19)$$

de manière à obtenir l'équation micromagnétique à résoudre :

$$\frac{2A}{\mu_0 M_s} \frac{d^2U}{dz^2} = \left(\frac{i\alpha\Omega M_s + (1 + \alpha^2)\Omega^2 M_s}{i\alpha\Omega - 1} + C_1 \right) U - (h_y \cos \theta_0 - h_x \sin \theta_0) \quad (5.20)$$

Cette équation différentielle du second ordre sera également résolue par la méthode de relaxation avec les conditions aux limites suivantes :

$$\frac{dU}{dz} = 0 \text{ en } z = 0 \text{ et } z = t \quad (5.21)$$

Connaissant les composantes du vecteur aimantation dynamique (U et V), nous pouvons déterminer la susceptibilité hyperfréquence. En considérant le régime linéaire pour (5.14) et $\vec{M} = \bar{\chi}\vec{H}$, nous obtenons :

$$M_s \begin{pmatrix} \cos(\theta_0) + U(z) \cos(\theta_0) \\ \sin(\theta_0) + U(z) \sin(\theta_0) \\ V(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_x \\ H_y \\ H_z \end{pmatrix} \quad (5.22)$$

Lorsque le champ est appliqué le long d'un des axes du plan (x ou y), l'expression du tenseur de susceptibilité se simplifie en un vecteur colonne dont l'inverse est aisé à déterminer. À titre d'exemple, la susceptibilité pour un champ h_y s'écrit :

$$\begin{pmatrix} \chi_{xy} \\ \chi_{yy} \\ \chi_{zy} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \frac{M_s}{H_0 t} \int_0^t (\cos(\theta_0) + U(z) \cos(\theta_0)) dz \\ \frac{M_s}{H_0 t} \int_0^t (\sin(\theta_0) + U(z) \sin(\theta_0)) dz \\ \frac{M_s}{H_0 t} \int_0^t V(z) dz \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \chi'_{xy} + i\chi''_{xy} \\ \chi'_{yy} + i\chi''_{yy} \\ \chi'_{zy} + i\chi''_{zy} \end{pmatrix}$$

Estimer la susceptibilité hyperfréquence lorsque le profil d'aimantation est connu revient par exemple, à effectuer le calcul d'une intégrale avec la méthode des trapèzes.

5.2.3.3 Prise en compte de l'effet de peau

Le calcul de la perméabilité hyperfréquence des couches minces amorphes d'épaisseur micronique et de résistivité électrique ($80 < \rho < 200 \mu\Omega.\text{cm}$) exige de prendre en compte l'effet de peau. Considérons que la longueur d'onde du champ a.c. dans le plan de l'échantillon est très supérieure à la taille d'un domaine magnétique. Lorsque l'aimantation de la couche est homogène, l'équation (5.23) relie la perméabilité apparente μ_a où l'effet de peau est présent, à la perméabilité intrinsèque μ_i de la manière suivante :

$$\mu_a = \mu_i \frac{\tan\left(\frac{\omega}{c}\sqrt{\varepsilon\mu_i}t/2\right)}{\frac{\omega}{c}\sqrt{\varepsilon\mu_i}t/2} \quad (5.23)$$

Les prédictions numériques de la perméabilité imaginaire sans effet de peau sont comparées sur la Figure 5.2 avec les résultats simulés pour lesquels la perméabilité est corrigée de l'effet de peau avec (5.23) (correction découplée). Tenir compte de l'effet de peau dans le calcul de la perméabilité se traduit par un élargissement et une diminution de l'intensité du pic d'absorption. Les applications numériques sont effectuées dans le cas d'une bicouche à anisotropies croisées d'épaisseur totale $1 \mu\text{m}$ et de conductivité électrique $\sigma = 770 \text{ S/m}$ ($\equiv \rho = 130 \mu\Omega.\text{cm}$).

Dans l'approximation quasi-statique, les équations de Maxwell pour un champ hyperfréquence s'écrivent :

$$\begin{cases} \frac{d^2 h_x}{dz^2} + \omega^2 \varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon (h_x + m_x) = 0, \\ \frac{d^2 h_y}{dz^2} + \omega^2 \varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon (h_y + m_y) = 0, \\ h_z + m_z = 0, \end{cases} \quad (5.24)$$

où $\varepsilon = 1 + i\sigma/(\omega\varepsilon_0)$ est la permittivité d'un métal en considérant la permittivité relative $\varepsilon_r = 1$. σ est la conductivité électrique (S/m). L'introduction de l'effet de peau engendre un couplage des composantes d'aimantation planaire avec le champ a.c. tandis qu'aucun changement n'intervient selon z .

Sur la même figure est également tracée la perméabilité imaginaire calculée à partir du modèle micromagnétique dans lequel les équations (5.24) sont intégrées dans l'équation (5.16) (correction couplée). On observe sur la Figure 5.2 que l'es-

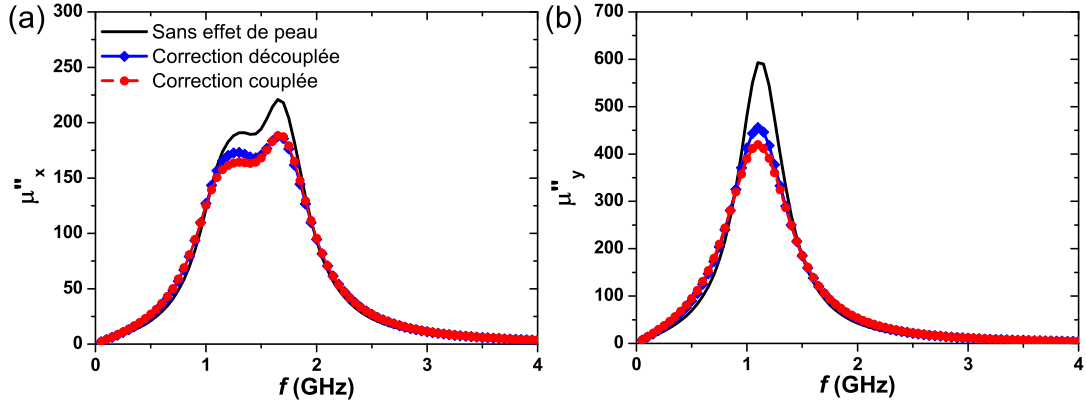


FIGURE 5.2 – **Comparatif de la perméabilité imaginaire avec et sans effet de peau.** Le champ hyperfréquence est appliqué selon x en (a) et selon y en (b). L'échantillon considéré est une bicouche à anisotropies croisées d'épaisseur $1\ \mu\text{m}$ et de conductivité $\sigma = 770\ \text{S/m}$. Les caractéristiques de la bicouche sont reportées dans la Table 5.2. La perméabilité sans effet de peau est comparée aux résultats avec la correction couplée (5.16, 5.24) et découplée de l'effet de peau (5.23).

sentiel de l'effet est corrigé lorsqu'on applique (5.23) à la perméabilité calculée. La prise en compte des équations de Maxwell (5.24) dès la résolution du cas dynamique apparaît comme un raffinement du spectre de perméabilité. Par la suite, les résultats issus du modèle *1D-Spiral* seront simulés avec la correction de l'effet de peau dite couplée.

5.2.3.4 Comportement sous champ du modèle *1D-Spiral*

Le modèle *1D-Spiral* décrit la situation d'une couche mince magnétique inhomogène dans l'épaisseur. Dans le cas le plus simple d'une bicouche à anisotropies croisées, on distingue les cas où :

1. **les deux couches sont complètement découplées** et se comportent comme un double macrospin sans interaction l'un avec l'autre. Cette situation correspond à modéliser la réponse hyperfréquence de la bicouche par un double gyro découplé (cf Figure 5.4 (a)).
2. **les deux couches sont couplées par l'énergie d'échange** et se composent d'une aimantation en spirale dans l'épaisseur : c'est la configuration décrite par le modèle micromagnétique (cf Figure 5.4 (b)).

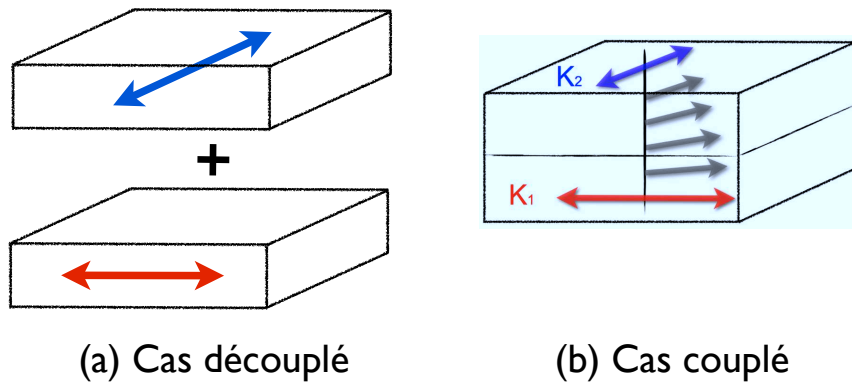


FIGURE 5.3 – Représentations d’une bicouche découplée (a) et couplée par l’échange (b). Dans le cas couplé, l’aimantation suit un mouvement de rotation dans l’épaisseur.

La dépendance en champ de la fréquence de résonance ou de la susceptibilité est une observable pertinente pour illustrer les différences entre les deux cas cités. L’application d’un champ se résume à réorienter les deux macrospins pour une bicouche découplée ou à replier la spirale d’aimantation dans une direction donnée pour une bicouche couplée par l’échange. Chacun des mécanismes de retournement d’aimantation produit une réponse dynamique singulière.

Échantillon	Couche	t (nm)	H_K (Oe)	θ_K (degré)	$4\pi M_s$ (kG)	α	A (J/m)
Fin	1	120	20	0	8.8	0.02	1×10^{-11}
	2	80	40	90			
Épais	1	600	20	0	8.8	0.02	1×10^{-11}
	2	400	40	90			

TABLE 5.2 – Paramètres de modélisation de bicouches à anisotropies croisées d’épaisseur totale $0.2 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$.

La Figure 5.4 montre le comportement sous champ de la fréquence de résonance⁴ de bicouches à anisotropies croisées d’épaisseur totale $0.2 \mu\text{m}$ et $1 \mu\text{m}$. Les paramètres de modélisation sont reportés dans la Table 5.2. La réponse dynamique est simulée pour quatre configurations de champs statique et dynamique appliqués selon les directions x ou y .

4. La fréquence de résonance est prise à la fréquence où la perméabilité imaginaire est maximale.

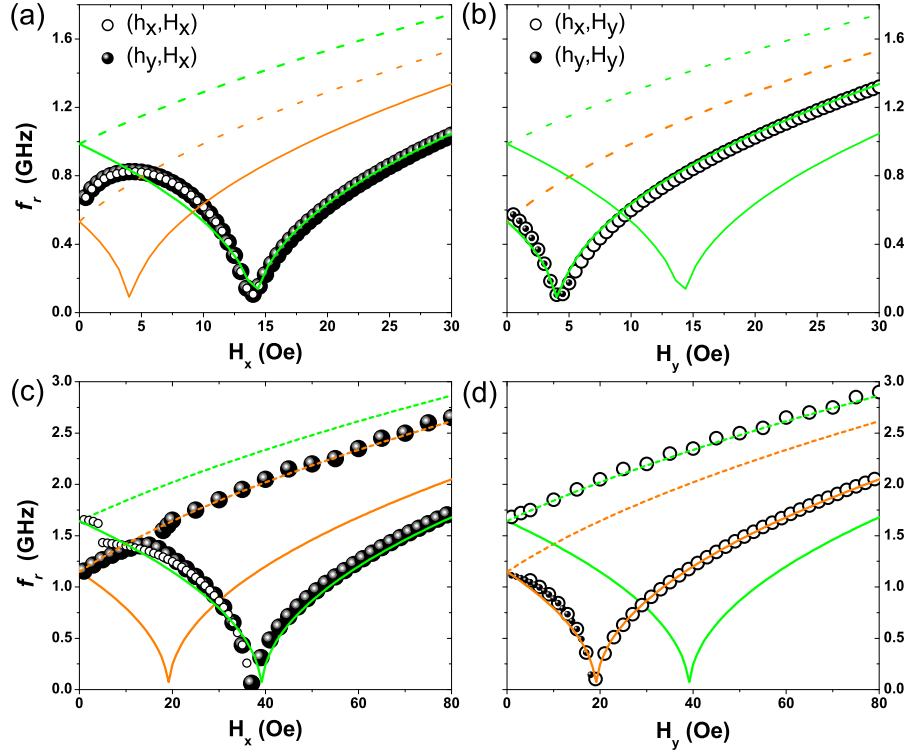


FIGURE 5.4 – Variations de la fréquence de résonance en fonction du champ statique appliqué selon x (a et c) et selon y (b et d) pour un échantillon fin (a-b) et épais (c-d). Les résultats simulés avec le modèle *1D-Spiral* sont tracés pour un champ a.c. appliqué selon x (cercle noir) et selon y (point noir). La fréquence de résonance des macrospins d'anisotropie H_{K1} (orange) et H_{K2} (vert), calculée avec $\alpha = 0.02$, est également reportée.

Dans le cas de l'échantillon fin, la fréquence de résonance tend à croître à champs faibles de manière similaire au comportement d'un macrospin sous champ longitudinal puis tend à s'annuler comme le macrospin sous champ transverse (cf Figure 5.4 (a)). En ce point, la variation de f_r de la bicouche diffère fortement du macrospin⁵. Il est notable qu'aucune configuration de champ ne conduit à faire croître f_r en racine carrée puisqu'il existe systématiquement un des deux axes d'anisotropie perpendiculaire à la direction du champ appliqué. De plus, le comportement de la fréquence de résonance diffère du cas découplé puisque f_r tend à s'annuler pour des

5. Dans le cas d'un macrospin, l'évolution de la fréquence de résonance en fonction du champ suit la relation de Kittel [135] selon laquelle f_r s'annule pour un champ appliqué transverse égal à H_K et croît en racine carrée pour $H > H_K$ ou pour un champ strictement longitudinal.

champs appliqués inférieurs au champ d'anisotropie de chacune des couches. En effet, les champs d'anisotropie pris pour les macrospins ($H_{K1} = 5$ Oe et $H_{K2} = 15$ Oe) sont très inférieurs aux champs d'anisotropie considérés dans le modèle (20 et 40 Oe, resp.). L'élaboration d'une bicouche à anisotropies croisées conduit à diminuer l'anisotropie effective et donc la fréquence de résonance de la couche. Les différences avec le double macrospin apparaissent également au niveau de la forme du spectre de perméabilité.

Dans le cas de l'échantillon épais, le spectre hyperfréquence présente un dédoublement du pic d'absorption pour les configurations (h_y, H_x) et (h_x, H_y) . Le premier pic correspond au comportement sous champ longitudinal d'un macrospin et le deuxième au comportement sous champ transverse de l'autre macrospin. Les champs d'anisotropie des macrospins sont cette fois les mêmes que ceux considérés dans le modèle *1D-Spiral*. Comme attendu, l'énergie d'échange a une contribution moindre pour les échantillons d'épaisseur micrométrique puisque $t \gg \delta_{ex}$. Le comportement d'une bicouche à anisotropies croisées s'apparente au comportement d'un double macrospin découplé. Ces résultats viennent conforter l'approximation réalisée au cours du chapitre précédent.

5.3 Élaboration spécifique de couches magnétiques inhomogènes

Le modèle micromagnétique *1D-Spiral* a été comparé au comportement de macrospins sous champ, qui est représentatif d'une bicouche découplée magnétiquement. La prochaine étape est de valider le modèle par rapport aux résultats expérimentaux d'une couche non-uniforme dans l'épaisseur. Pour ce faire, la configuration d'une bicouche à base cobalt avec des anisotropies orthogonales pour chacune des couches est retenue afin d'imposer un profil d'anisotropie connu. La Figure 5.5 présente le diagramme de phase magnétique (uniforme/non-uniforme) dans la plan t_1/Δ_1 et t_2/Δ_2 en fonction du paramètre k_1 [134]. Δ_1 désigne la compétition entre l'échange et l'anisotropie⁶ notée $\Delta_i = \sqrt{A/K_i}$. Le contrepois des anisotropies associées à chaque couche est défini par le rapport $k_1 = K_1/(K_1 + K_2)$ avec $k_2 = 1 - k_1$. Nous supposons $\Delta_1 = \Delta_2$ comme les bicouches sont composées du même matériau magnétique et déposées dans les mêmes conditions d'élaboration. L'intérêt de ce diagramme est d'indiquer les rapports d'épaisseur résultant en une bicouche magnétique inhomogène.

Des bicouches à anisotropies croisées avec différents rapports d'épaisseur notés ($i : j$) ont été élaborées afin d'explorer le régime non-uniforme décrit par le diagramme de phase : (5 : 1), (4 : 2), (3 : 3), (2 : 4) et (1 : 5). Pour ce faire, un porte-échantillon rotatif a été spécifiquement développé. La rotation est commandée par le biais d'une électrovanne conditionnant deux positions en angle comprises entre 0 et 90°. Le porte-échantillon est placé en vis-à-vis de la cible et les dépôts sont réalisés en statique. L'intérêt majeur de ce système est de procéder à l'élaboration de la bicouche en continu, c'est-à-dire sans interruption du plasma lors de la croissance de la bicouche. De plus, dans la littérature, les bicouches à anisotropies croisées sont généralement produites en deux étapes, voire avec une couche non-magnétique intermédiaire [136]. Les dépôts ont été réalisés en statique et sur un substrat en verre afin de limiter au maximum les sources de dispersion d'anisotropie. Les paramètres de pulvérisation sont : $W_s = 13.8 \text{ W/cm}^2$, $P_{\text{gaz}} = 0.2 \text{ Pa}$ et $d_{c-s} = 70 \text{ mm}$. Le champ magnétron est suffisamment fort pour saturer la première couche déposée le long de son axe difficile suite à la rotation du porte-échantillon. Chacune des couches ferromagnétiques déposées est supposée avoir les mêmes propriétés magnétiques. En

6. Cette quantité correspond à la largeur de paroi de Bloch δ_B .

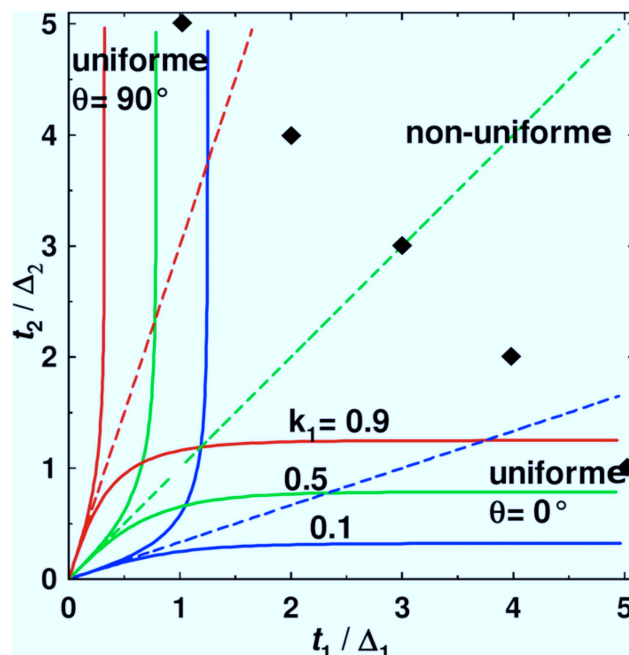


FIGURE 5.5 – Diagramme d'état de l'aimantation défini dans le plan t_1/Δ_1 et t_2/Δ_2 en fonction de k_1 . Le diagramme comporte deux phases : uniforme selon x et y et non-uniforme entre. Les lignes en tiret sont les solutions dans l'approximation d'un macrospin. Les symboles \blacklozenge représentent les géométries des bicouches sélectionnées en supposant $\Delta_1 = \Delta_2$ et $k_1 = 0.5$.

complément, une monocouche de référence (6 : 0) a été déposée selon les mêmes paramètres de pulvérisation.

La Figure 5.6 montre les cycles d'hystérésis expérimentaux de bicouches avec des axes d'anisotropie à 90° . Les couches magnétiques conservent un caractère doux puisque $H_{sat} < 33$ Oe et $H_c < 2$ Oe. Du fait de la forte dispersion de l'aimantation, on utilise la notion de champ de saturation et non plus de champ d'anisotropie lors de l'interprétation des cycles d'hystérésis. À champs faibles, les courbes d'aimantation tendent à être carrées tandis qu'elles présentent une forte courbure pour des champs plus élevés, en raison de la forte dispersion d'aimantation volontairement induite. Les courbes d'aimantation réduite m_x et m_y se croisent en fonction du rapport d'épaisseur entre les deux couches, indiquant une inversion des axes de "facile" et de "difficile" aimantation. Toutes les bicouches possèdent une aimantation non-uniforme puisque les courbes d'aimantation ne présentent pas d'axe difficile bien

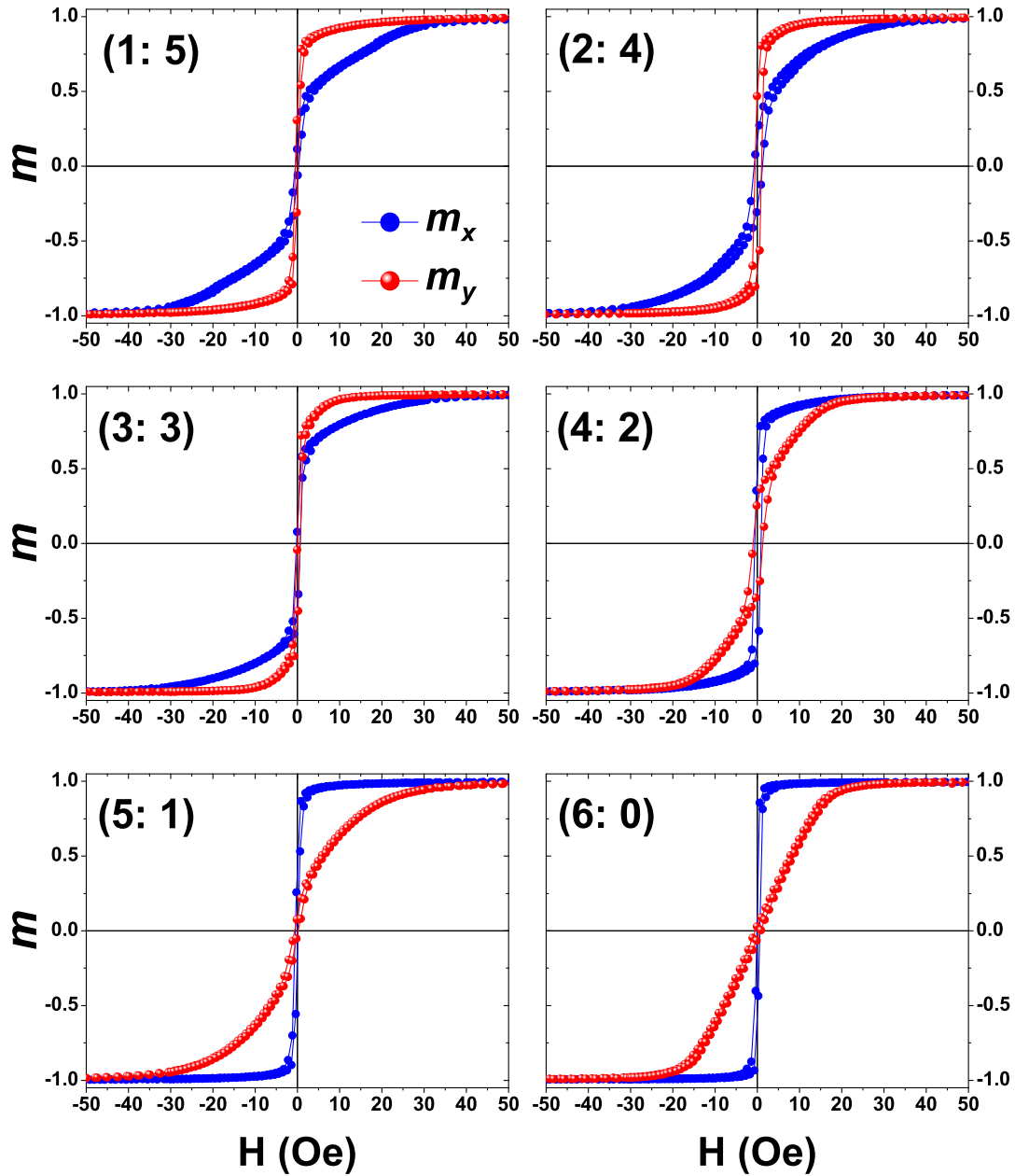


FIGURE 5.6 – Cycles d’hystérésis expérimentaux de bicouches à anisotropies croisées avec augmentation graduelle de l’épaisseur de la 1^{ère} couche et d’épaisseur totale constante. La courbe d’aimantation d’une monocouche (6 : 0) déposée dans les mêmes conditions de pulvérisation correspond au cas quasi-uniforme.

5.4. ÉTUDE D'UNE BICOUCHE À ANISOTROPIES CROISÉES

défini selon x ou y , comme nous l'observons pour la monocouche. Ces résultats sont bien en accord avec le diagramme d'état présenté sur la Figure 5.5.

Remarquons que le champ de saturation maximum selon x ($H_{sat,x} \approx 33$ Oe) est supérieur au champ de saturation selon y ($H_{sat,y} \approx 24$ Oe) sauf pour l'échantillon (5 : 1) pour lequel $H_{sat,y} \approx 33$ Oe. De plus, les branches d'aimantation m_x et m_y pour l'échantillon (3 : 3) ne se superposent pas parfaitement. Il en est de même pour les couples d'échantillon [(5 : 1), (1 : 5)] et [(4 : 2), (2 : 4)] dont les courbes d'aimantations ne sont pas totalement symétriques. L'épaisseur d'une des deux couches peut être légèrement supérieure à l'autre ou il existe un désalignement des axes d'anisotropie. On peut également évoquer un gradient de contrainte dans l'épaisseur de la couche dû à la porosité ou la rugosité. Notons que la première couche est déposée sur un substrat verre non-magnétique tandis que la deuxième couche est déposée sur une couche métallique magnétique dont la rugosité diffère de celle du verre.

Ce procédé d'élaboration a permis de déposer des échantillons à forte dispersion d'aimantation avec un profil d'anisotropie imposé. En réalité, les bicouches à anisotropies croisées obtenues présentent une légère asymétrie. De plus, les bicouches ne comportent aucune couche intermédiaire afin d'exacerber l'interaction d'échange à l'interface des deux couches.

5.4 Étude d'une bicouche à anisotropies croisées

5.4.1 Application du modèle *1D-Spiral*

Maintenant que nous disposons de couches minces dont la distribution d'aimantation est non-uniforme dans l'épaisseur mais pour lesquelles la distribution d'anisotropie est imposée, nous pouvons appliquer le modèle *1D-Spiral*. Le choix de l'échantillon s'est porté sur la bicouche (3 : 3) d'épaisseur $t_1 = t_2$. Dans ce cas, la dépendance en z de l'intensité et de l'angle d'anisotropie est définie par :

- $K(z) = K_1$ et $\theta_K(z) = 0$ pour $0 < z < t_1$
- $K(z) = K_2$ et $\theta_K(z) = \pi/2$ pour $t_1 < z < t$

avec $t = t_1 + t_2$ (cf Figure 5.1). Une comparaison des résultats expérimentaux et simulés avec le modèle *1D-Spiral* sera effectuée en statique dans un premier temps et en dynamique dans un deuxième temps.

5.4. ÉTUDE D'UNE BICOUCHE À ANISOTROPIES CROISÉES

5.4.1.1 En statique

La Figure 5.7 présente les cycles d'hystérésis mesurés selon les axes x et y correspondant respectivement à la réponse magnétique de l'axe facile de la 1^{ère} couche et de la 2^{ème} couche. Les champs de saturation $H_{sat,x}$ et $H_{sat,y}$ diffèrent alors que l'aimantation à saturation M_s et la densité d'énergie d'anisotropie K sont supposées être identiques pour chacune des couches. De plus, les aimantations rémanentes ne coïncident pas. Ces écarts indiquent que les deux couches déposées ne sont pas totalement symétriques pour les raisons évoquées précédemment.

Couche	t (nm)	H_K (Oe)	θ_K (degré)	$4\pi M_s$ (kG)	α	A (J/m)
1	230	17	0	8.7	0.016	0.7×10^{-11}
2	270	24	90			

TABLE 5.3 – Paramètres de modélisation de la bicouche (3 : 3).

Les cycles d'hystérésis simulés à l'aide du modèle *1D-Spiral* sont également tracés sur la Figure 5.7. Dans la Table 5.3 sont reportés les paramètres de modélisation qui ont été définis de la manière suivante :

- l'aimantation à saturation correspond à celle mesurée au VSM.
- la constante d'échange considérée est calculée à partir de (1.1) en considérant une dilution de J_{ex} pris pour le cobalt pur.
- une dissymétrie en épaisseur est introduite afin de tenir compte de la paroi de Bloch asymétrique engendrée dans l'épaisseur [137]. Il faut distinguer les épaisseurs géométriques des couches 1 et 2 des épaisseurs représentatives de la quantité d'aimantation selon x et y .
- deux valeurs de champ d'anisotropie (H_{K1}, H_{K2}) sont paramétrées alors que nous avons déposé le même matériau pour chacune des couches. Afin d'être cohérents avec les cycles d'hystérésis, nous choisissons de fixer $H_{K1} \neq H_{K2}$ et de conserver $\theta_{K1} = 0^\circ$ en $z = 0$ et $\theta_{K2} = 90^\circ$ en $z = t$.

Les mêmes paramètres seront conservés pour la partie dynamique avec $\alpha = 0.016$. Les longueurs caractéristiques Δ_i et les épaisseurs t_i diffèrent pour chacune des couches, nous obtenons donc $t_1/\Delta_1 = 2.11$ et $t_1/\Delta_2 = 2.94$ pour $k_1 = 0.4$. La bicouche élaborée est bien comprise dans le régime non-uniforme du diagramme d'état (cf Figure 5.5).

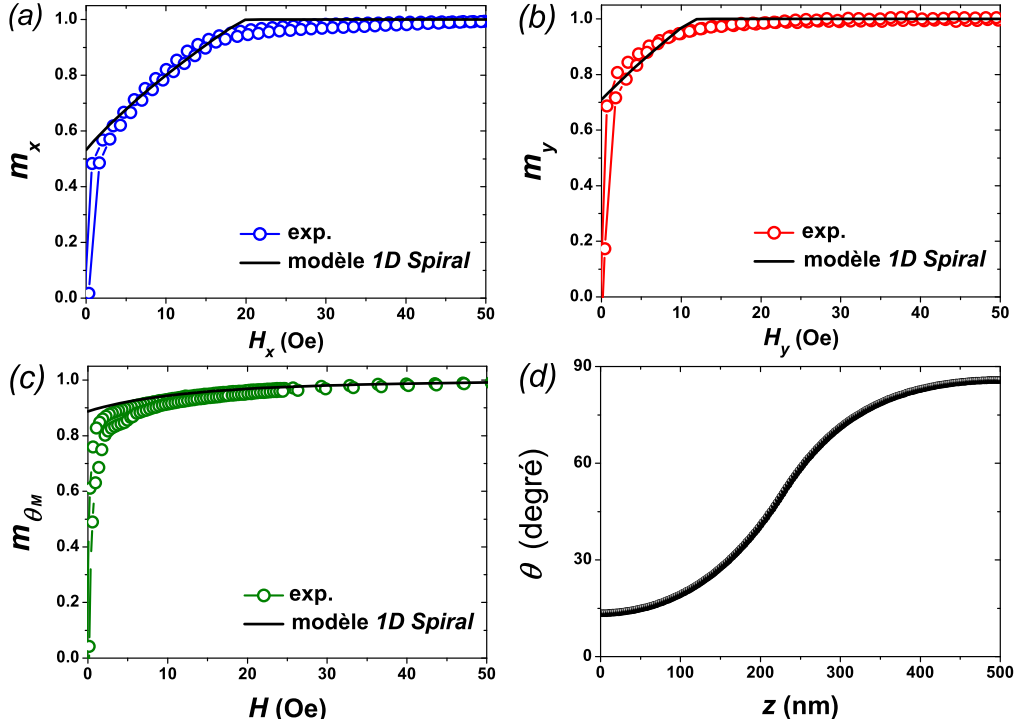


FIGURE 5.7 – Courbes d'aimantation mesurées selon x (a), y (b) et à 45° (c). Les courbes d'aimantation modélisées sont tracées en trait continu noir. Le profil de l'aimantation dans l'épaisseur est également reporté (d).

Le comportement global des courbes d'aimantation est bien reproduit par le modèle. Comme l'aimantation est supposée uniforme dans le plan (xy) et varie uniquement en z , le modèle ne prédit pas l'existence d'un champ coercitif dont l'origine est associée aux parois de domaine. De plus, la modélisation de la courbure des cycles d'hystérésis expérimentaux nécessiterait de considérer un désalignement des axes d'anisotropie et/ou une distribution d'anisotropie en angle ou en intensité plus complexe. Le profil d'aimantation $\theta(z)$ prédit par le modèle à la rémanence correspond à une rotation de l'aimantation comprise entre $\theta_1 = 13.45^\circ$ en $z = 0$ et $\theta_2 = 85.69^\circ$ en $z = t$. Il est notable que deux axes d'anisotropie [$\theta_{K1} = 0^\circ$; $\theta_{K2} = 90^\circ$] engendrent une dispersion d'aimantation [$\theta_1 \neq 0^\circ$; $\theta_2 \neq 90^\circ$] en raison de l'échange. La courbe d'aimantation calculée le long de l'angle d'aimantation moyenne ($\theta_M = 53^\circ$) reproduit convenablement celle mesurée à 45° . Cette direction de mesure tend à être l'axe de facile aimantation comme $M_r \rightarrow 1$.

5.4.1.2 En dynamique

Sans champ

La Figure 5.8 montre des niveaux de perméabilité élevés à la fois selon les axes x et y . Les perméabilités μ_x et μ_y correspondent respectivement à la réponse de la 2^{ème} et de la 1^{ère} couche. La réponse hyperfréquence d'une bicouche à anisotropies croisées est plus complexe que celle d'une monocouche puisque le spectre de perméabilité μ_x présente deux pics d'absorption. De ce fait, la fréquence de résonance définie pour $\mu' = 1$ diffère de 17 % selon les deux axes de mesure. Définir la fréquence de résonance à partir de μ''_{max} permet une meilleure détermination de la fréquence de résonance ($f_r = 1$ GHz) et de rendre compte de l'existence de deux pics (cette méthode sera retenue par la suite). La réalisation d'une couche mince magnétique à forte dispersion d'aimantation engendre une diminution de f_r en comparaison de la monocouche quasi-uniforme (6 : 0) ($f_r = 1.2$ GHz).

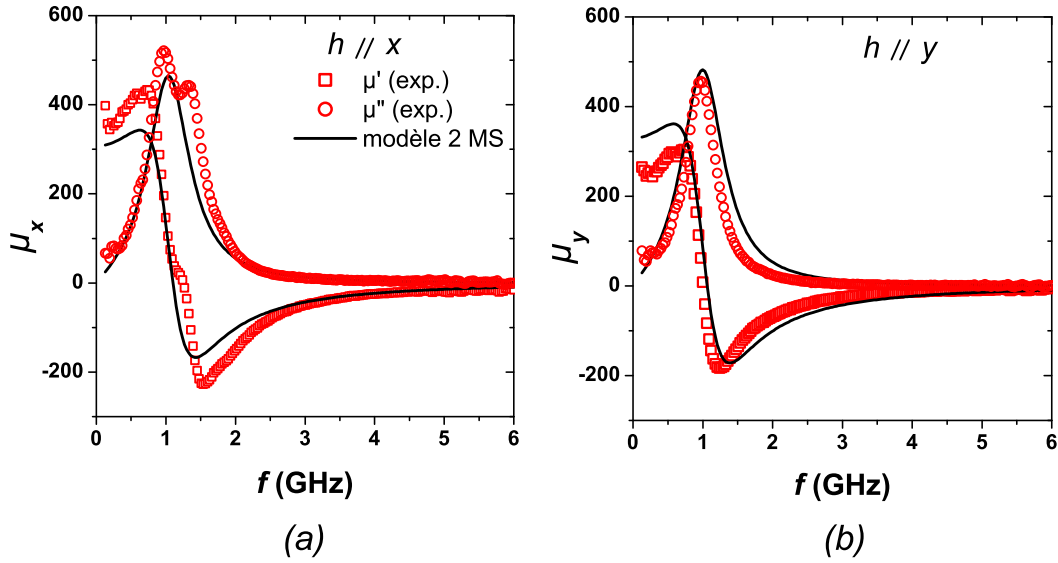


FIGURE 5.8 – Perméabilité hyperfréquence d'une bicouche à anisotropies croisées (3 : 3) mesurée selon x (a) et y (b). Les courbes en trait continu représentent la perméabilité hyperfréquence simulée à partir d'un double macrospin découplé.

5.4. ÉTUDE D'UNE BICOUCHE À ANISOTROPIES CROISÉES

Une tentative de modélisation des spectres expérimentaux en considérant un double macrospin découplé est tracée sur la Figure 5.8. Les paramètres considérés sont $4\pi M_s = 9.1$ kGauss, $H_{K1} = 13.8$ Oe, $H_{K2} = 8.8$ Oe et $\alpha = 0.02$. Comme attendu, le double macrospin ne reproduit pas les deux pics observés sur la Figure 5.8 (a). Par défaut, on observe une légère augmentation de l'amortissement afin d'élargir l'unique pic d'absorption.

Sous champ

La dynamique de l'aimantation de l'échantillon (3 : 3) est étudiée avec pour observable la perméabilité hyperfréquence sous champ magnétique statique. La Figure 5.9 montre les spectres de perméabilité sous champ statique pour les configurations de champs statique et dynamique (h_y, H_x) et (h_x, H_y) . Pour chaque configuration, le champ est appliqué selon l'axe facile d'une couche et réciproquement, selon l'axe difficile pour l'autre. Bien que le spectre μ_y présente un seul pic d'absorption à la rémanence, l'application d'un champ produit un dédoublement de ce pic en raison de l'existence des deux axes d'anisotropie. Les spectres simulés miment convenablement le comportement général de la perméabilité expérimentale et notamment l'apparition du double pic sous champ.

Afin de comparer les résultats expérimentaux et simulés, nous décidons de reporter en détail le comportement sous champ de la fréquence de résonance au carré (f_r^2) et du maximum de la perméabilité imaginaire (μ''_{max}) correspondant aux champs (h_y, H_x) et (h_x, H_y) . La Figure 5.10 montre la variation de $f_r^2(H)$ jusqu'à 150 Oe. Deux fréquences de résonance sont tracées puisque les spectres hyperfréquences présentent deux pics d'absorption.

Dans l'approximation du macrospin, la dépendance en champ de f_r^2 est décrite par les équations de Kittel [135] pour un champ planaire $H > H_K$ soit longitudinal soit transverse à l'axe de facile aimantation :

$$f_{r\perp}^2 = \tilde{\gamma}^2 (M_s \cdot (H - H_K)), \quad (5.25)$$

$$f_{r\parallel}^2 = \tilde{\gamma}^2 (M_s \cdot (H + H_K)). \quad (5.26)$$

L'extrapolation linéaire de la fréquence de résonance dans l'état saturé croise l'axe

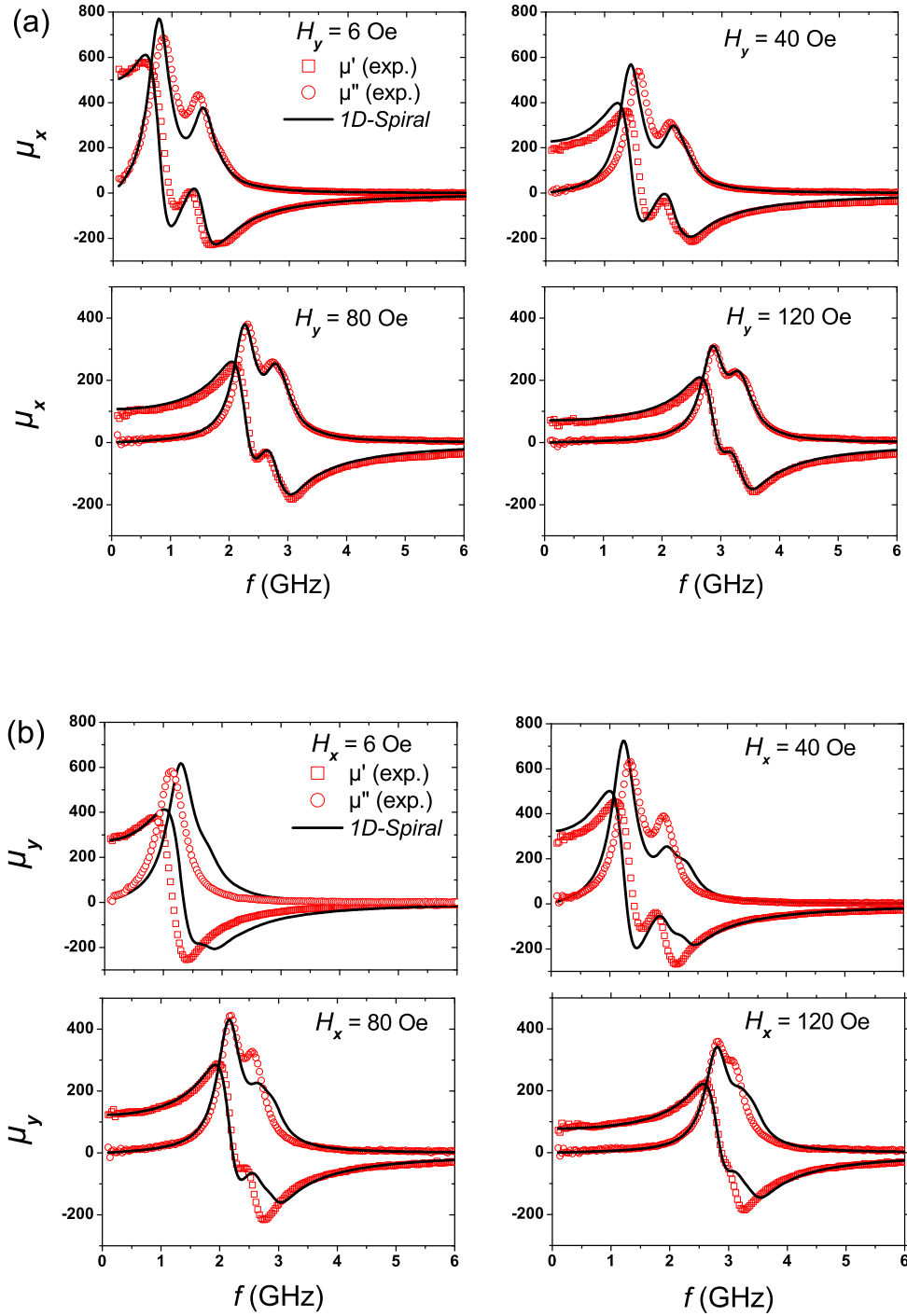


FIGURE 5.9 – Perméabilité hyperfréquence en fonction du champ statique appliqué. Les configurations excitées sont (h_x, H_y) en (a) et (h_y, H_x) en (b).

5.4. ÉTUDE D'UNE BICOUCHE À ANISOTROPIES CROISÉES

des champs pour ($-H = H_{\parallel}$ et $+H = H_{\perp}$) et offre ainsi la possibilité de déterminer le champ d'anisotropie effectif de chaque couche. Rappelons que l'extrapolation linéaire de f_r^2 coupe l'axe H en $H_{K,\parallel} = H_{K,\perp}$ pour une couche magnétique uniforme d'anisotropie uniaxe planaire. En réalité, il est obtenu :

- $H_{K1,\parallel} = 9.7$ Oe et $H_{K2,\perp} = 15.6$ Oe pour (h_y, H_x)
- $H_{K1,\perp} = 5.3$ Oe et $H_{K2,\parallel} = 20.7$ Oe pour (h_x, H_y)

L'écart entre les valeurs H_{\parallel} et H_{\perp} pour chacune des anisotropies est corrélé à la forte dispersion d'aimantation [138], qui est volontairement induite pour la bicouche (3 : 3). Néanmoins, les champs d'anisotropie moyens déterminés à partir de $H_{K,\parallel}$ and $H_{K,\perp}$ donnent une estimation de $H_{K1} = 7.5$ Oe et de $H_{K2} = 18.2$ Oe.

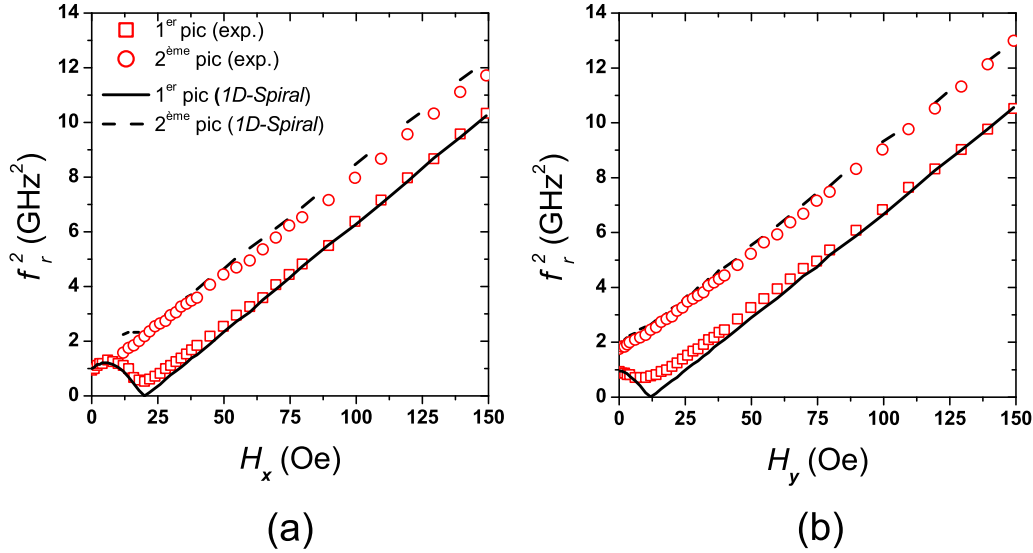


FIGURE 5.10 – Variations en fonction du champ statique de la fréquence de résonance au carré, pour les configurations de champ (h_y, H_x) en (a) et (h_x, H_y) en (b). En trait noir sont reportées les prédictions du modèle *1D-Spiral*.

La modélisation du comportement sous champ de la fréquence de résonance dans l'approximation d'un double macrospin requiert de prendre deux jeux d'anisotropie différents $[H_{K1}, H_{K2}]$ pour les configurations de champs (h_y, H_x) et (h_x, H_y) .

5.4. ÉTUDE D'UNE BICOUCHE À ANISOTROPIES CROISÉES

Les résultats numériques obtenus à partir du modèle *1D-Spiral* montrent un accord satisfaisant avec les résultats expérimentaux (cf Figure 5.10). Le modèle reproduit notamment l'accroissement de f_r^2 associée au 1^{er} pic et sa diminution pour $H_x < H_{K2}$. **Pour ce faire, un seul et unique jeu de champs d'anisotropie a été considéré dans le modèle *1D-Spiral*.** Les valeurs de champs d'anisotropie utilisées [$H_{K1} = 13.4$ Oe, $H_{K2} = 23.9$ Oe] sont supérieures aux valeurs moyennes obtenues précédemment par extrapolation. Notons que le modèle surestime la chute de la fréquence de résonance pour un champ voisin du champ d'anisotropie de chacune des couches. Une désorientation des axes d'anisotropie devrait être prise en compte pour corriger cet effet.

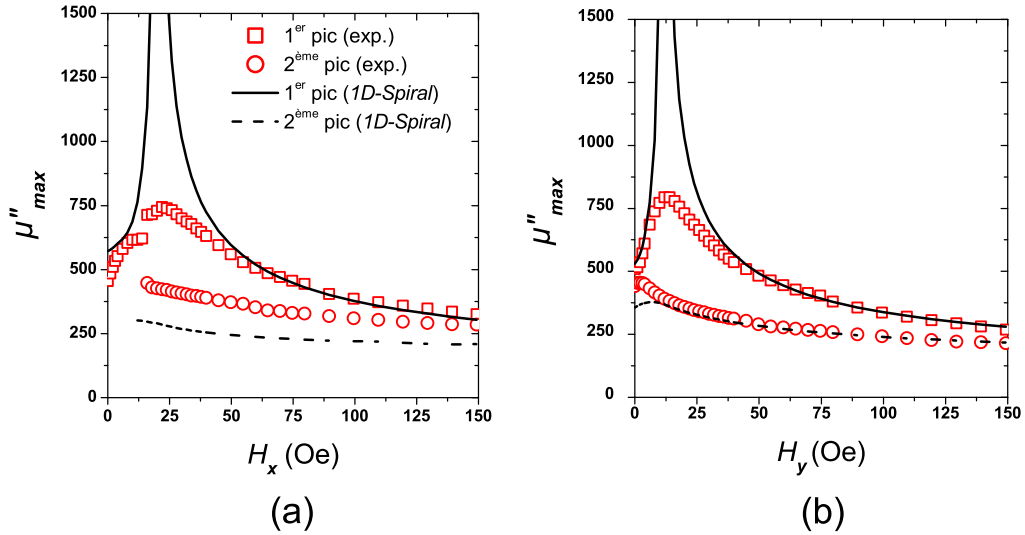


FIGURE 5.11 – Variations en champ du maximum de la perméabilité imaginaire, pour les configurations de champ (h_y, H_x) en (a) et (h_x, H_y) en (b). Les prédictions du modèle sont tracées en noir.

Le modèle reproduit également de manière satisfaisante le comportement sous champ de μ''_{max} propre à chacun des deux pics d'absorption (cf Figure 5.11). La perméabilité imaginaire associée au 1^{er} pic est fortement surestimée au voisinage des champs d'anisotropie de chacune des couches. Comme nous l'avons signifié pour la fréquence de résonance, cet écart est dû à un désalignement des axes d'anisotropies ou à une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur plus complexe que celle considérée. Il faut également souligner l'écart entre les résultats expérimentaux et

numériques pour le maximum en μ'' du 2^{ème} pic pour (h_y, H_x) .

La Figure 5.12 présente les spectres de perméabilité expérimentaux et simulés pour les autres configurations de champs (h_x, H_x) et (h_y, H_y) . Les niveaux de perméabilité tendent vers 1 comme le champ appliqué aligne l'aimantation le long du champ dynamique. Le modèle reproduit convenablement la réponse hyperfréquence pour des champs faibles. Un désaccord apparaît pour des champs plus élevés, ce qui a déjà été observé sur les cycles d'hystérésis (cf Figure 5.7). En effet, les écarts rencontrés en statique entre les résultats expérimentaux et théoriques se retrouvent également en dynamique.

Le modèle micromagnétique *1D-Spiral* avec une distribution d'anisotropie en z génère un profil d'aimantation qui propose une bonne description des cycles d'hystérésis et de la dynamique de l'aimantation d'une bicouche à anisotropies croisées (3 : 3). Des évolutions du modèle et de l'élaboration des échantillons magnétiques inhomogènes peuvent être apportées pour améliorer l'accord entre résultats expérimentaux et prédictions théoriques. Expérimentalement, des dépôts sur substrat rond permettraient de réduire la contribution du champ dipolaire qui perturbe la distribution d'aimantation. Une désorientation des axes d'anisotropie ($\theta_i(z) \neq 0, \pi/2$) et/ou une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur ($K_i(z)$ et $\theta_i(z)$ avec $i > 2$) seraient des solutions pertinentes et paramétrables dans le modèle dans le but de mimer la forte dispersion d'aimantation.

5.4.2 Aimantation dynamiquement couplée

5.4.2.1 Application pour une couche non-homogène

Les échantillons à forte dispersion d'aimantation dans l'épaisseur se prêtent parfaitement à la validation de l'aimantation dynamiquement couplée pour des matériaux magnétiques non-uniformes. L'aimantation dynamiquement couplée avec les termes correctifs a été définie au cours du Chapitre I. La Figure 5.13 présente les quantités intégrales $M_{\mu,x}$, $M_{\mu,y}$ et M_μ en fonction de la borne d'intégration F pour des couches magnétiques uniforme et non-uniforme. Pour la monocouche uniforme, $M_{\mu,x}$ est très inférieure à $M_{\mu,y}$. Lorsque la borne d'intégration est suffisamment élevée, M_μ tend bien vers l'aimantation à saturation du matériau. Dans le cas de la

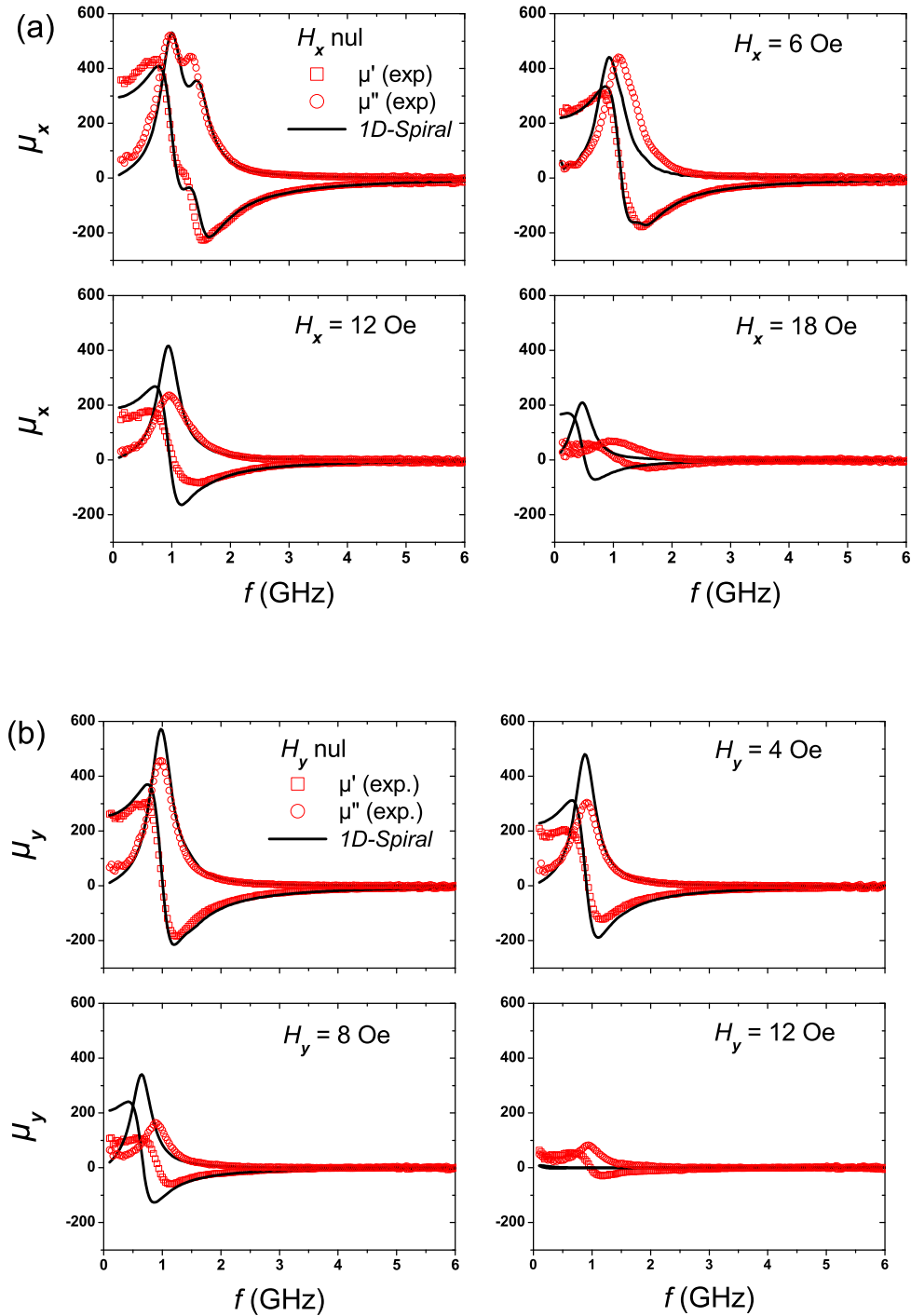


FIGURE 5.12 – **Dépendance en champ de la perméabilité hyperfréquence.** Les configurations excitées sont (h_x, H_x) en (a) et (h_y, H_y) en (b). La perméabilité tend vers 1 comme le champ appliqué sature l'échantillon le long du champ dynamique.

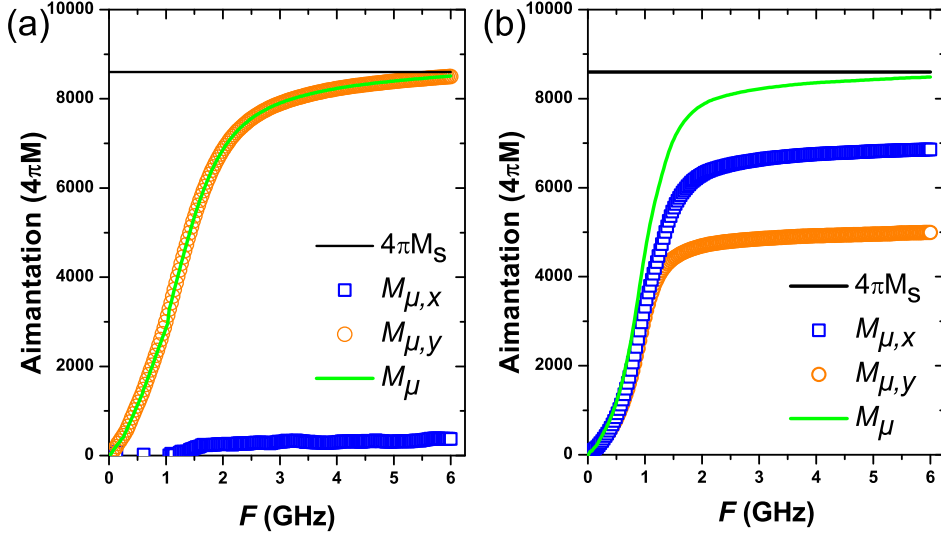


FIGURE 5.13 – Aimantation dynamiquement couplée pour une couche mince magnétique homogène (a) et non-homogène (b). Quel que soit le profil d'aimantation, la quantité M_μ tend vers M_s lorsque la borne d'intégration F est suffisamment élevée.

bicouche à anisotropies croisées (3 : 3), l'écart significatif entre $M_{\mu,x}$ et $M_{\mu,y}$ montre que la bicouche n'est pas totalement symétrique et que l'axe de facile aimantation n'est pas orienté à 45° . Néanmoins, il est notable que l'aimantation dynamiquement couplée tend vers l'aimantation à saturation du matériau, même pour un échantillon avec une forte dispersion d'aimantation.

La Table 5.4 reporte une comparaison de M_μ avec la loi de Snoek (1.21). Comme attendu, la loi de Snoek donne la valeur de l'aimantation à saturation pour la monocouche uniforme et une valeur fautive pour l'échantillon inhomogène. En effet, il n'est pas possible d'appliquer la loi de Snoek comme la bicouche ne se comporte pas comme une monocouche avec une aimantation uniforme orientée à 45° . Au contraire, l'aimantation dynamiquement couplée procure une estimation de l'aimantation à saturation voisine de celle du matériau homogène ou non.

5.4. ÉTUDE D'UNE BICOUCHE À ANISOTROPIES CROISÉES

Échantillon	$4\pi M_{s,VSM}$ (kG)	$M_{\mu,corr}$ (kG)	$M_{Snoek,\mu'}$ (kG)
Monocouche	8.6	8.5	8.6
Bicouche (3 : 3)	8.6	8.5	5.3 7.9

TABLE 5.4 – **Données caractéristiques obtenues à partir des spectres hyperfréquences pour une monocouche et une bicouche à anisotropies croisées (3 : 3). L'épaisseur totale de chacun des échantillons est égale à 0.5 μm .**

5.4.2.2 Aimantation dynamiquement couplée sous champ

Précédemment, il a été montré que l'aimantation dynamiquement couplée est une quantité pertinente pour l'estimation de l'aimantation à saturation à partir de la perméabilité hyperfréquence $[\mu_x, \mu_y]$ **à champ nul**. Nous allons vérifier s'il en est de même pour les quantités partielles M_μ **sous champ statique** par rapport aux courbes d'aimantation $M(H)$. Pour ce faire, quatre configurations de champs statique et dynamique appliqués dans le plan de la couche sont explorées. La direction des champs est référencée par une notation indicielle dont le premier et le deuxième indice (x ou y) de $M_{\mu,xy}$ désignent respectivement la direction du champ hyperfréquence et du champ statique par rapport à l'axe d'anisotropie du matériau.

La dépendance en champ de l'aimantation dynamiquement couplée pour une monocouche d'anisotropie uniaxe planaire est représentée sur la Figure 5.14 (a). Le comportement sous champ de $M_{\mu,yx}$ et $M_{\mu,xy}$ reproduit respectivement les courbes d'aimantation M_x et M_y mesurées au VSM. Comme l'indiquent les équations de la dynamique de l'aimantation, le champ hyperfréquence couple uniquement avec la composante de l'aimantation transverse. Au contraire, pour une mesure au VSM, le champ magnétique appliqué couple avec l'aimantation longitudinale ou sa projection selon l'axe du champ appliqué. La quantité intégrale totale M_μ reste constante et voisine de l'aimantation à saturation du matériau. Actuellement, le VSM du laboratoire permet uniquement de mesurer les composantes d'aimantation statique M_x et M_y sous champ statique appliqué le long de x . La mesure simultanée selon les axes x et y requiert l'emploi d'un magnétomètre à échantillon vibrant vectoriel. Ce dispositif permettrait la comparaison de $M_{\mu,xx}$ et $M_{\mu,yy}$ avec les courbes d'aimantation M_x et M_y selon y .

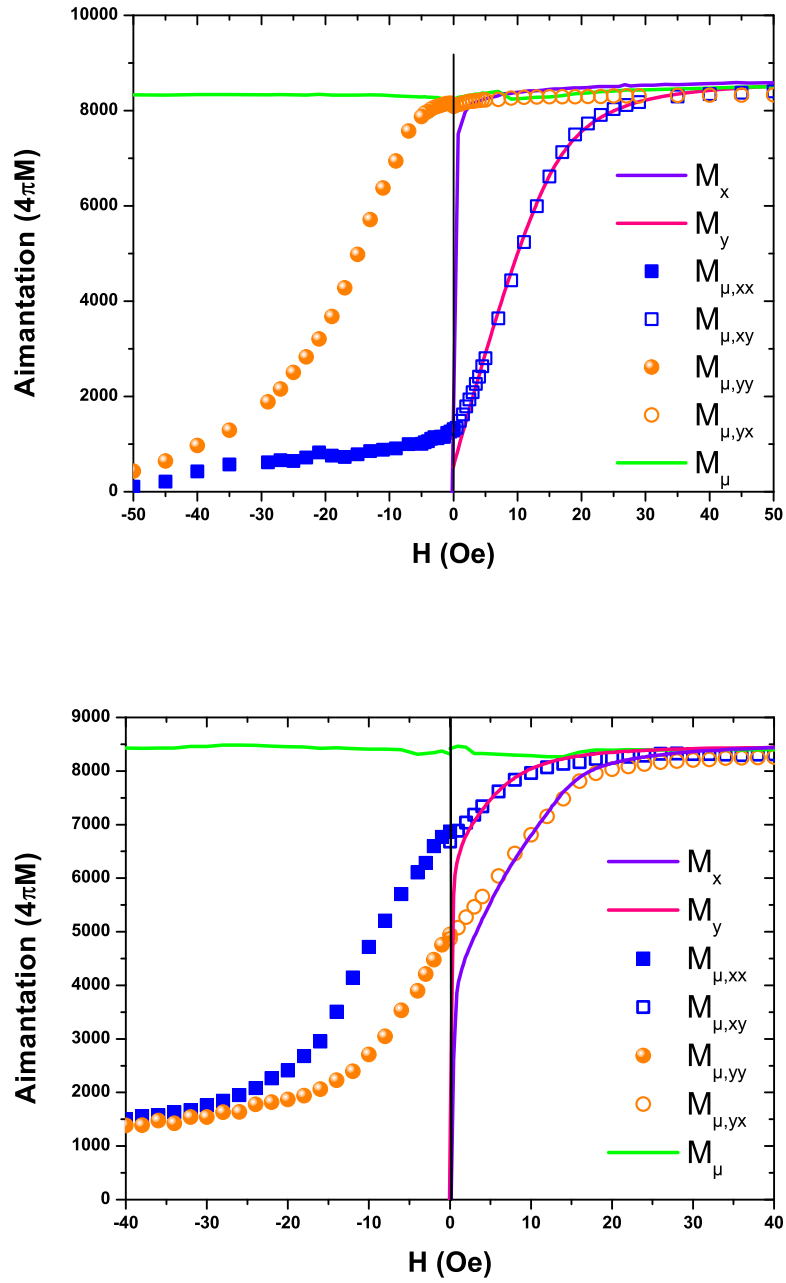


FIGURE 5.14 – Dépendance en champ de l'aimantation dynamiquement couplée dans le cas d'une monocouche d'aimantation homogène (a) et d'une bicouche à anisotropies croisées d'aimantation non-homogène (b). Sont également représentées les courbes d'aimantation et M_μ .

Dans le cas de la bicouche à anisotropies croisées, la variation de $M_{\mu,yx}$ et $M_{\mu,xy}$ mime également les courbes d'aimantation expérimentales M_x et M_y pour $H > H_c$. Cependant M_μ tend vers une valeur non-nulle et non-négligeable lorsque le champ statique appliqué est parallèle au champ dynamique. Il est intéressant de remarquer que M_μ est légèrement supérieure à l'aimantation statique à la rémanence et pour des champs faibles. En effet, la mesure statique effectuée au VSM est sensible à la valeur moyenne du vecteur aimantation $\langle M \rangle$ et donc uniquement à la direction de l'aimantation. Au contraire, M_μ est sensible à l'orientation de l'aimantation et non à sa moyenne. Ainsi la quantité intégrale M_μ correspond à la moyenne quadratique de l'aimantation $\sqrt{\langle M^2 \rangle}$. Tant que le matériau présente une structure en domaines magnétiques avec une direction *et un sens privilégiés*, nous avons $\langle M \rangle \neq \sqrt{\langle M^2 \rangle}$ et $M_x \neq M_{\mu,yx}$. Lorsque l'échantillon est totalement saturé dans une direction, les égalités $\langle M \rangle = \sqrt{\langle M^2 \rangle}$ et $M_x = M_{\mu,yx}$ sont obtenues. L'exploitation de la perméabilité hyperfréquence avec M_μ renseigne sur l'orientation préférentielle de l'aimantation, et non seulement sur sa direction comme au VSM. À la saturation, tout écart entre M_s et M_μ calculé à partir de $M_{\mu,x}$ et $M_{\mu,y}$ révèle l'existence d'une aimantation magnétique hors plan.

La Figure 5.15 reporte les courbes d'aimantation pour une autre bicouche à anisotropies croisées (3 : 3), mesurées selon les axes x , y et pour des angles voisins de l'aimantation moyenne (45° et 135°). Comme attendu, la courbe d'aimantation à 45° correspond à une mesure selon l'axe de facile aimantation avec une aimantation qui "traîne" à atteindre la saturation. La courbe d'aimantation à 135° montre un comportement tout autre qui se distingue de la courbe à 45°. Cette singularité a déjà été reportée sur des bicouches d'anisotropies à 90° et est certainement due au désalignement des axes d'anisotropie [136]. Il est remarquable que la quantité intégrale M_μ mime la variation de l'aimantation sous champ statique, même pour ces comportements atypiques.

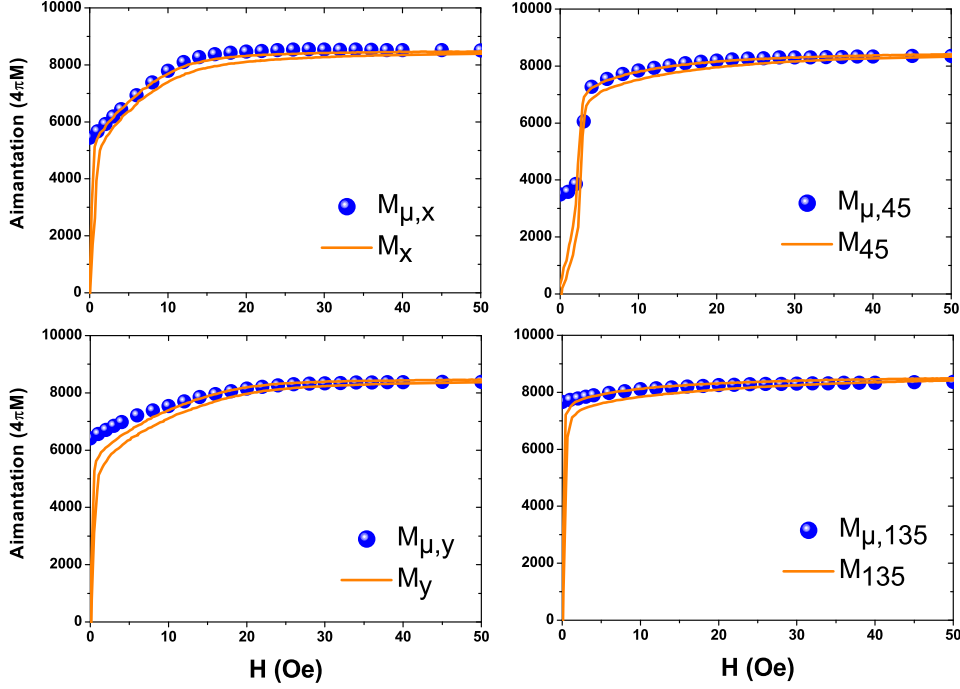


FIGURE 5.15 – Comportement sous champ de M_μ d'un échantillon non-uniforme pour différents angles de mesures. Les courbes d'aimantation associées sont également représentées.

L'exploitation des spectres de perméabilité s'opère aisément dans le cas d'une aimantation uniforme à partir de l'équation du gyromagnétisme et de la loi de Snoek. Pour des couches minces présentant une forte dispersion d'aimantation, la loi de Snoek n'est plus applicable pour la détermination de l'aimantation à saturation à partir de f_r et de μ'_i tandis que l'aimantation dynamiquement couplée s'avère appropriée. En complément des courbes d'aimantation statique, cette grandeur renseigne sur le sens, l'orientation de l'aimantation. Pour cette raison, M_μ pourrait être d'un intérêt majeur pour la caractérisation des matériaux magnétiques tels que les multicouches ou les nanodots dont la distribution d'aimantation est complexe.

5.4.3 Structure en domaines magnétiques

La géométrie des films à anisotropies orthogonales est relativement simple mais offre un comportement de l'aimantation en statique et en dynamique riche. Le fait d'élaborer une bicouche avec deux axes d'anisotropie à 90° conduit à former une structure en domaines magnétiques complexe où l'aimantation décrit une spirale dans l'épaisseur telle une demi-paroi de Bloch. De nombreux travaux ont porté sur la structure en domaines magnétiques des « *double films* » constitués de deux couches ferromagnétiques séparées par une couche intermédiaire non-magnétique, dont la nature et l'épaisseur régissent l'énergie d'échange. De cette manière, différents ordres magnétiques sont obtenus : ferromagnétique, antiferromagnétique ou couplage bi-quadratique [139, 140, 141].

Malgré l'absence de couche intermédiaire, les bicouches élaborées précédemment adoptent un comportement similaire aux « *double films* » avec un couplage bi-quadratique en raison des axes d'anisotropie fixés à 90° [142, 143, 144]. Niedoba a notamment montré que la distribution d'aimantation d'une bicouche à anisotropies croisées suit une symétrie d'ordre 4 [143], comme l'illustre la Figure 5.16. Dans chacun des quatre quadrants délimités par les axes d'anisotropie K_1 et K_2 , l'aimantation moyenne est orientée à 45° . Comme l'ont montré les résultats simulés avec le modèle *1D Spiral* (cf Figure 5.6), l'aimantation décrit une spirale dans l'épaisseur d'un angle $\theta_1 = 13.45^\circ \rightarrow \theta_{K1} = 0^\circ$ vers un angle $\theta_2 = 85.69^\circ \rightarrow \theta_{K2} = 90^\circ$. Ainsi les axes d'aimantation ne superposent pas parfaitement avec les axes d'anisotropie en raison de l'échange. Lorsqu'on applique un champ magnétique statique planaire dans une direction quelconque, un des variants est favorisé de manière à replier l'éventail des vecteurs aimantation dans cette unique direction.

Au cours de cette section, nous nous intéresserons uniquement à la distribution d'aimantation surfacique de la bicouche à anisotropies croisées (3 : 3) étudiée au cours des sections précédentes. Sa structure en domaines sera observée en imagerie magnéto-optique par effet Kerr longitudinal (cf Annexe B). Il est important de souligner que cette technique n'est sensible qu'à la composante de l'aimantation parallèle à l'axe de sensibilité.

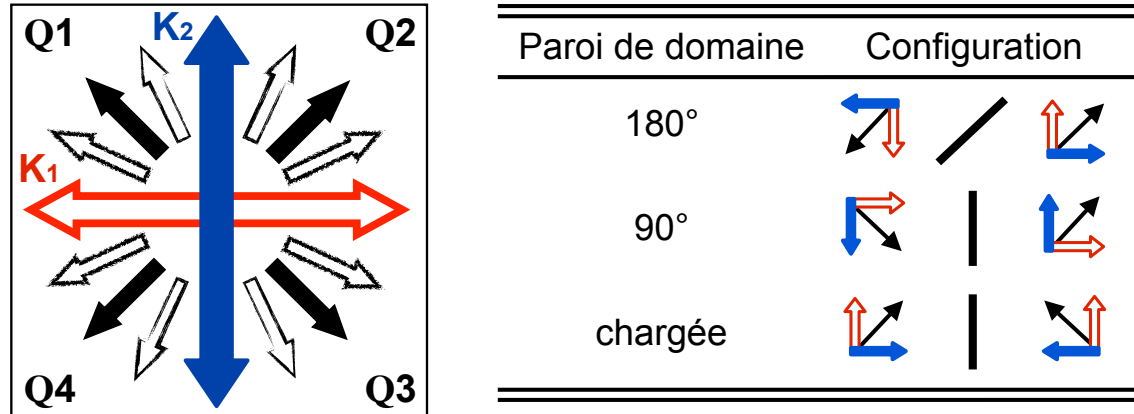


FIGURE 5.16 – Représentation vue de-dessus de l'aimantation de symétrie d'ordre 4 pour une bicouche à anisotropies croisées (3 : 3). La représentation dans l'épaisseur a été montrée sur la Figure 5.1. L'aimantation (flèches noires) est confinée dans un des quatre quadrants délimités par les axes d'anisotropie K_1 et K_2 , représentés respectivement en rouge et en bleu. Dans chaque cadrant, l'aimantation décrit une spirale dans l'épaisseur d'un angle $\theta_1 \rightarrow \theta_{K_1}$ vers un angle $\theta_2 \rightarrow \theta_{K_2}$, avec une aimantation moyenne à 45° . Lorsqu'on applique un champ, la spirale se replie sur elle-même de manière à ce que l'aimantation s'aligne le long du champ. La Table reporte les configurations d'aimantation responsables des parois de domaines à 180° , à 45° et chargée.

5.4.3.1 Structure en domaines magnétiques sans champ

La Figure 5.17 montre la structure en domaines magnétiques à la rémanence, représentant la surface de la 2^{ème} couche avec l'axe d'anisotropie K_2 parallèle (a) et transverse (b) à l'axe de sensibilité de l'effet Kerr. Rappelons que la structure en domaines magnétiques d'une couche mince douce à anisotropie uniaxe planaire se compose de larges domaines magnétiques séparés par des parois de domaine 180° . Pour les échantillons de taille finie ($9 \times 9 \text{ mm}^2$), les bords présentent des domaines de fermeture appelés domaines en aiguille [121, 145]. Imposer des axes d'anisotropie orthogonaux dans l'épaisseur produit une structure en domaines magnétiques toute autre, composée de domaines magnétiques orientés à $\approx 45^\circ$ et délimités par des parois de domaine à 45° et à 180° . De la même manière qu'une monocouche, des domaines de fermeture en aiguille subsistent sur les bords de l'échantillon. Conjointement sont représentées les images Kerr de la face arrière avec l'axe d'anisotropie K_1 parallèle (c)

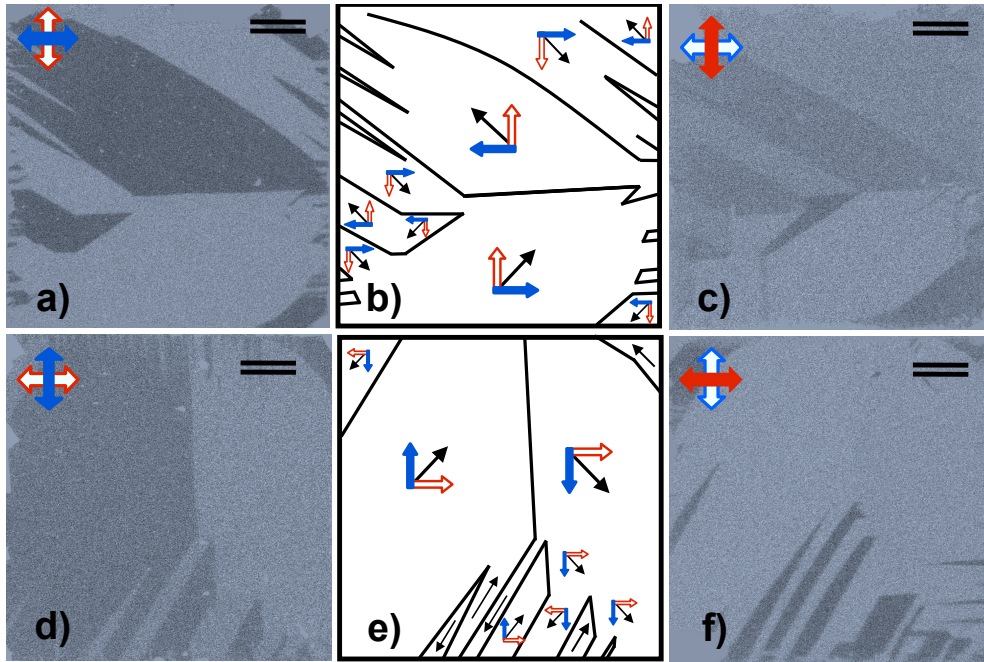


FIGURE 5.17 – Structures en domaines magnétiques d'une bicouche (3 : 3) à la rémanence correspondant à la surface de la 2^{ème} couche (a et d) et de la 1^{ère} couche observée à travers le substrat en verre (c et f). La distribution d'aimantation est expliquée par le biais des schémas (b et f) correspondant aux images (a et d), sur lesquels la direction d'aimantation moyenne (flèche noire) est comprise entre les axes d'anisotropie K_1 (flèche rouge) et K_2 (flèche bleu). L'anisotropie de la couche observée est en trait plein. L'axe de sensibilité de l'effet Kerr longitudinal est indiqué par le symbole =.

et transverse (f) à l'axe de sensibilité. Le contraste des images Kerr de la face arrière est plus faible puisque la structure en domaines est observée à travers le substrat en verre. La comparaison de la structure en domaines de la face arrière avec la face avant nécessite d'effectuer une correction par symétrie des images Kerr. Les structures en domaines de la 1^{ère} et de la 2^{ème} couche montrent un bon accord, en sachant que la distribution d'aimantation des matériaux doux est sensible au moindre petit champ appliqué. Les distributions d'aimantation correspondantes aux Figures 5.17 (a,c) et (d,f) sont représentées respectivement en (b) et (e). L'interprétation des images Kerr exige de considérer une symétrie d'ordre 4 de l'aimantation, imposée par les axes d'anisotropies croisés à 90° . Selon la configuration de l'aimantation, des parois de domaine à 90° et à 180° se forment (cf Table 5.16).

5.4.3.2 Structure en domaines magnétiques sous champ

Les images Kerr du processus d'aimantation sous champ de la 2^{ème} couche sont montrées sur la Figure 5.18. Le champ appliqué est transverse à l'anisotropie K_1 et à l'axe de sensibilité. La distribution de l'aimantation à la rémanence est rappelée en (b). La structure en domaines à la rémanence est dans un équilibre énergétique précaire puisqu'un faible champ engendre une forte variation de celle-ci. En effet, les directions d'aimantation moyenne sont passées respectivement des quadrants Q2 et Q3 aux quadrants Q4 et Q1 du fait de la direction du champ extérieur. La formation des domaines magnétiques se produit au niveau des bords de l'échantillon par nucléation et croissance des domaines en aiguilles. Pour des champs suffisamment élevés, l'aimantation s'aligne le long de K_1 . La saturation est atteinte pour un champ de 16 Oe en accord avec les cycles d'hystérésis présentés sur la Figure 5.7.

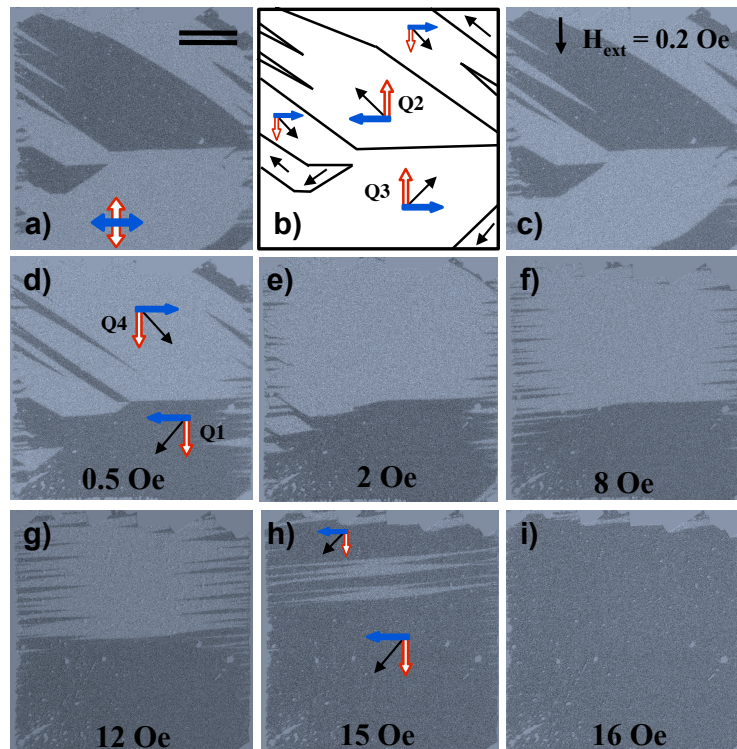


FIGURE 5.18 – Comportement de la structure en domaines magnétiques sous champ transverse à K_1 . La direction du champ appliqué conduit l'aimantation à s'orienter dans les quadrants (1) et (2). Il en résulte la formation d'une paroi chargée en zig-zag (d).

5.4. ÉTUDE D'UNE BICOUCHE À ANISOTROPIES CROISÉES

Le processus d'aimantation sous champ de la première couche (face arrière) est montré sur la Figure 5.19 avec un champ appliqué transverse à l'anisotropie K_1 et à l'axe de sensibilité. La distribution de l'aimantation à la rémanence est rappelée en (b). Cette fois, la direction du champ favorise l'aimantation du quadrant Q2 au détriment du quadrant Q4 par des mouvements de paroi de domaines et réoriente l'aimantation du quadrant Q3 au quadrant Q1. La Figure 5.19 (d) montre la formation d'une paroi chargée en zig-zag puisque les aimantations des deux domaines adjacents sont de directions opposées (cf Table 5.16). À forts champs, l'aimantation est alignée le long de K_2 .

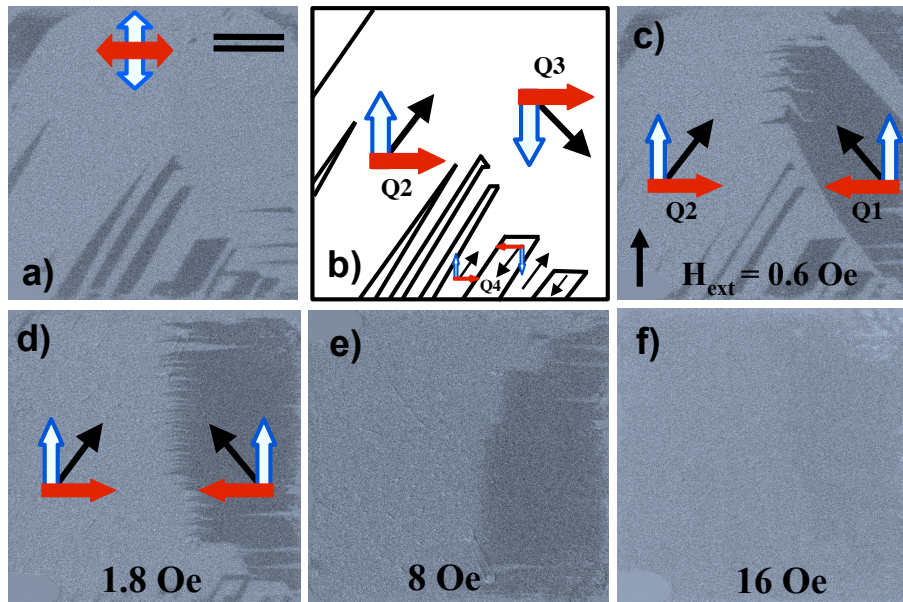


FIGURE 5.19 – **Processus d'aimantation sous champ transverse à K_1** La première couche est observée à travers le verre. La distribution d'aimantation de la structure en domaines à la rémanence (a) est représentée en (b). Il est nécessaire de considérer une symétrie d'ordre 4 pour expliquer le comportement sous champ de l'aimantation.

La structure en domaines magnétiques d'une bicouche à anisotropies croisées à 90° montre une distribution d'aimantation de symétrie d'ordre 4 qui s'apparente à celle d'un couche magnétique biaxe. Cette structure se compose de parois de domaine à 45° , à 180° ainsi que de parois chargées en zig-zag.

5.4.4 Spectrométrie de précession

Les techniques d'imagerie magnéto-optique renseignent uniquement sur la structure en domaines magnétiques surfacique en raison de l'épaisseur sondée par le faisceau optique polarisé (≈ 40 nm). Rares sont les techniques qui sondent le profil d'aimantation dans l'épaisseur de la couche magnétique. Il existe la diffusion de résonance nucléaire avec un rayonnement synchrotron qui nécessite des couches ultraminces à base fer et composées de l'isotope Fe^{57} [126]. De part l'interaction du moment porté par le neutron avec les moments magnétiques atomiques, la dépolarisation neutronique offre également la possibilité de sonder la structure magnétique en volume. Halpern *et al* ont développé dès les années 40 le formalisme mathématique de la précession d'un neutron à travers un domaine magnétique [146]. Mais les premières validations expérimentales ont été effectuées dans les années 70 par Rekveldt [127]. Cette technique a été essentiellement employée pour déterminer la taille et l'orientation des domaines magnétiques et plus rarement pour sonder la paroi de domaine magnétique. Des expériences de spectrométrie de précession ont été menées dans le but de déterminer le profil d'aimantation dans l'épaisseur de la bicouche à anisotropies croisées (3 : 3) et de le comparer à celui obtenu à partir des mesures magnétiques modélisées en utilisant le modèle *1D-Spiral* (cf Section 5.4.1.1).

5.4.4.1 Formalisme mathématique

L'expression de la précession du spin d'un neutron lors de la traversée d'un domaine magnétique est donnée par l'équation de mouvement :

$$\vec{S} = \gamma_n \vec{S} \times \vec{B}(r) \quad (5.27)$$

γ_n correspond au rapport gyromagnétique du neutron et \vec{B} désigne l'induction magnétique à une position donnée r . Cette équation s'apparente à l'équation de LLG pour la dynamique de l'aimantation sans le terme d'amortissement. L'équation temporelle est réécrite en dépendance spatiale où la position du neutron est comprise dans le domaine $\xi \in [0, 1]$:

$$\frac{d\vec{S}}{d\xi} = \Omega \left(\vec{S}(\xi) \times \left(\frac{\vec{H}}{M_s} + \frac{\vec{H}_d}{M_s} + \vec{m}(\vec{H}, \xi) \right) \right) \quad (5.28)$$

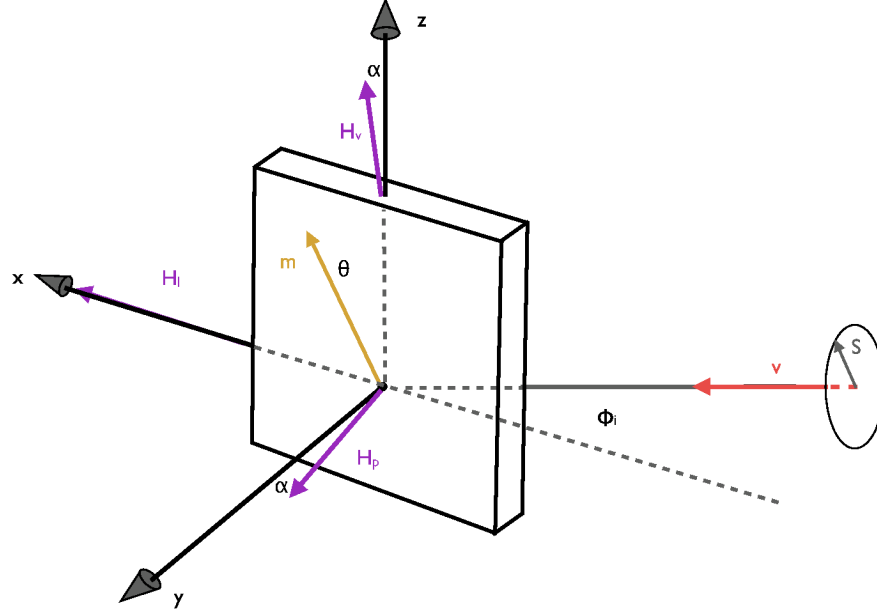


FIGURE 5.20 – Schéma de la géométrie de diffusion de neutrons.

avec $\xi = y/t$, $\Omega = \frac{\gamma_n \mu_0 M_s t}{v \sin(\phi_i) \cos(\alpha)}$ et $v = 920$ m/s la vitesse du neutron.

En accord avec la Figure 5.20, les vecteurs aimantation et champs magnétiques statiques s'écrivent :

$$\vec{m} = \begin{pmatrix} \sin(\theta(\xi)) \\ 0 \\ \cos(\theta(\xi)) \end{pmatrix}, \quad \vec{h} = \begin{pmatrix} h_l \\ h_p \cos(\alpha) - h_v \sin(\alpha) \\ h_p \sin(\alpha) + h_v \cos(\alpha) \end{pmatrix} \quad (5.29)$$

avec $\vec{m} = \vec{M}/M_s$ l'aimantation réduite et $\vec{h}_i = \vec{H}_i/M_s$ les champs statiques réduits. $\theta(\xi)$ est l'angle d'aimantation dans l'épaisseur de la couche. L'angle α est introduit afin de tenir compte d'une légère inclinaison de l'échantillon. Le système d'équation se compose de trois équations différentielles couplées qui s'expriment sous la forme réduite suivante :

$$\frac{d\vec{S}}{d\xi} = \bar{D}(\xi)\vec{S}(\xi) \quad (5.30)$$

où $\bar{\bar{D}}(\xi)$ désigne la matrice de dépolarisation neutronique :

$$\bar{\bar{D}}(\xi) = \Omega \begin{pmatrix} 0 & h_z + m_z(\xi) & -h_y \\ -(h_z + m_z(\xi)) & 0 & h_x + m_x(\xi) \\ h_y & -(h_x + m_x(\xi)) & 0 \end{pmatrix} \quad (5.31)$$

Dans un premier temps, un profil d'aimantation est généré à partir du modèle micro-magnétique *1D-Spiral* en supposant une distribution d'anisotropie donnée. Dans un deuxième temps, l'équation de précession (5.28) est résolue dans le profil d'aimantation. Le rapport de dépolarisation simulé est comparé aux résultats expérimentaux. La résolution de l'équation de précession du neutron en espace et en champ doit être effectuée numériquement même si pour certaines configurations de champ, une solution analytique du 1^{er} ordre peut être exprimée [147].

5.4.4.2 Dispositif expérimental et nature de l'échantillon

Les expériences de spectrométrie de précession ont été réalisées par transmission de neutrons polarisés avec analyseur de neutrons sur le réflectomètre PRISM ($\lambda = 0.43$ nm) du Laboratoire Léon Brillouin à Saclay, en collaboration avec F. Ott, A. Thiaville et P. Thibaudeau. La ligne de faisceau se compose d'un polariseur [Fe/Si], d'un analyseur [FeCo/V] et de deux flippers Mezei. Un champ guide vertical de 10 Oe est appliqué lors du trajet du neutron pour maintenir sa polarisation. Trois jeux de bobines d'Helmholtz disposés autour de l'échantillon permettent d'appliquer un champ magnétique dans toutes les directions de l'espace jusqu'à 50 Oe. Il faut néanmoins vérifier que la précession du neutron reste adiabatique lors du passage du champ guide au champ appliqué, en s'assurant un rapport de renversement de spin de plus de 35. Lors de la traversée de l'échantillon, les neutrons suivent un mouvement de précession autour de l'aimantation. L'échantillonnage en angle rasant ($-7^\circ < \phi_i < +7^\circ$) modifie l'épaisseur de film traversée et augmente la durée de précession du neutron dans la couche. Les résultats de dépolarisation neutronique présentent le rapport d'état du spin neutronique UP entrant et sortant $\langle \uparrow \parallel \uparrow \rangle$ en fonction de l'angle d'incidence ϕ_i .

5.4. ÉTUDE D'UNE BICOUCHE À ANISOTROPIES CROISÉES

Une bicouche (3 : 3) a été déposée sur un substrat verre⁷ carré d'épaisseur 1 mm et de grandes dimensions 50×50 mm². En effet, le faisceau de neutrons incident est rasant à la tranche de l'échantillon dans le but d'augmenter l'épaisseur traversée par le neutron. Cet échantillon a été élaboré au cours du même dépôt que l'échantillon (3 : 3) de dimensions 9×9 mm² étudié en Section 5.4.

5.4.4.3 Résultats

La Figure 5.21 (a) présente les résultats expérimentaux de précession neutronique, soit le coefficient de dépolarisation $\langle up|up \rangle$ en fonction de l'angle d'incidence. La mesure correspond à la configuration dans laquelle l'anisotropie magnétique K_1 est selon z (et K_2 selon x) pour un champ statique $H_v = 5$ Oe. L'échantillon a été préalablement saturé avec un fort champ H_v qui permet de replier la spirale d'aimantation le long de l'anisotropie K_1 . Le profil d'aimantation *sous champ* a été généré en utilisant le modèle *1D-Spiral* et les paramètres de modélisation reportés dans la Table 5.5. Le profil de dépolarisation neutronique simulé montre un bon accord avec les résultats expérimentaux. Il est important de souligner que la mesure de spectrométrie de précession est extrêmement sensible : la moindre variation de la distribution d'aimantation est visible sur le profil de dépolarisation. C'est pourquoi, la robustesse du profil d'aimantation $\theta(z)$ a été vérifiée pour d'autres configurations de champ [147].

Couche	t (nm)	H_K (Oe)	θ_K (degré)	$4\pi M_s$ (kG)	A (J/m)
1	250	9.8	11	9.0	0.7×10^{-11}
2	250	9.8	83		

TABLE 5.5 – Paramètres de modélisation d'une bicouche à anisotropies croisées (3 : 3) à partir des données neutrons.

Le profil d'aimantation simulé *sans champ* est tracé sur la Figure 5.21 (b). Les angles d'aimantation sont compris entre $\theta_1 = 16^\circ$ en $z = 0$ et $\theta_2 = 78^\circ$ en $z = t$. Ce dernier est comparé avec celui obtenu à partir des mesures réalisées au VSM ou en spire (cf Section 5.4.1.1). Ils ne se superposent pas parfaitement puisque des paramètres différents ont été pris pour chacune des modélisations. En effet, les paramètres reportés

7. Un verre sans bore a été sélectionné comme cet élément est neutrophage.

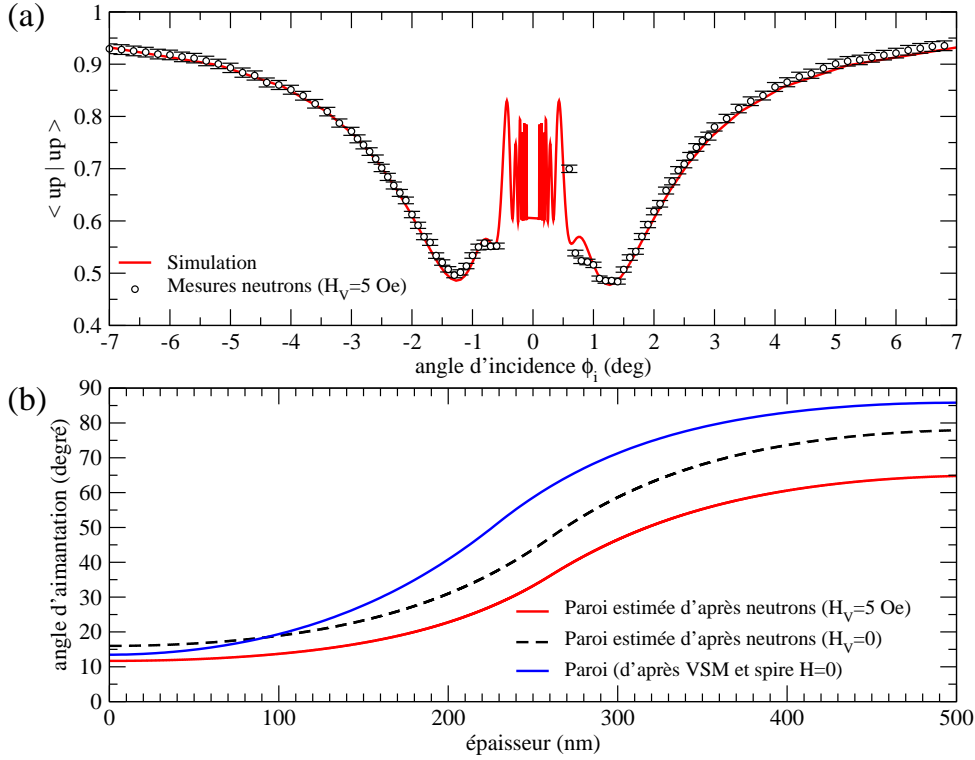


FIGURE 5.21 – Dépendances en angle d’incidence ϕ_i des coefficients de dépolari-
sation expérimentaux et simulés en supposant une distribution d’ani-
sotropie dans l’épaisseur (a). Sur la figure (b), le profil d’aimantation généré
avec le modèle *1D-Spiral* afin de simuler les données neutron est tracé en rouge. La
distribution d’aimantation associée à champ nul est tracée en noir et est comparée
à celle obtenue pour les mesures au VSM et en spire en Section 5.4.1.1 (trait bleu).

dans la Table 5.5 ne permettent pas de mimer correctement le profil de dépolari-
sation. Néanmoins, il est remarquable que les profils d’aimantation diffèrent aussi
peu. Comme le montre le profil d’aimantation sous un champ de 5 Oe, il suffit d’un
champ de quelques œersteds pour modifier le profil. Il est nécessaire de rappeler que
toutes les expériences n’ont pu être réalisées sur le même échantillon. Ainsi une légère
variation du champ dipolaire ou de la magnétostriction peut expliquer ce léger écart.

Dans la continuité des travaux entrepris pour la caractérisation et
la modélisation d’une bicouche à anisotropies croisées, des mesures par
spectrométrie de précession ont été menées afin de sonder le profil d’ai-
mantation. Le profil ainsi obtenu montre un accord satisfaisant avec celui
résultant des mesures magnétiques.

5.5 Application du modèle *1D-Spiral* pour une multicouche

Une aimantation en spirale a été induite dans l'épaisseur par le biais de l'élaboration de bicouches magnétiques avec deux anisotropies croisées à 90° . Une telle géométrie offre l'opportunité de diminuer l'anisotropie effective. En effet, la monocouche possède une fréquence de résonance égale à 1.2 GHz et la bicouche (3 : 3) à 1.0 GHz. Il est ainsi possible d'abaisser la fréquence de résonance en élaborant des multicouches magnétiques douces dont les différentes strates ont des anisotropies croisées. C'est pourquoi une multicouche constituée de 10 couches d'épaisseur 50 nm avec des axes d'anisotropie orientés alternativement selon x et y a été élaborée avec le même porte-échantillon rotatif ($0 \Leftrightarrow 90^\circ$).

La Figure 5.22 récapitule les propriétés statiques et dynamiques sous champ de la multicouche à anisotropies croisées. Comme nous l'avons déjà vu pour l'échantillon (3 : 3), les courbes d'aimantation m_x et m_y ne se superposent pas parfaitement (cf Figure 5.22 (a)) et présentent des champs de saturation plus faibles que ceux de la bicouche $H_{sat,x} \approx 16$ Oe et $H_{sat,y} \approx 6$ Oe. La variation de la perméabilité imaginaire sous champ pour les configurations (h_x, H_y) et (h_y, H_x) est également reportée. À champ nul, la perméabilité imaginaire présente de forts niveaux pour une excitation h_x et faibles pour h_y , en accord avec les cycles d'hystérésis. La fréquence de résonance ($f_r = 0.88$ GHz) est trouvée plus faible que celle de la monocouche et de la bicouche associées. Au contraire de la bicouche (3 : 3), le comportement sous champ de la perméabilité hyperfréquence ne présente pas de dédoublement du pic d'absorption. Ainsi une seule fréquence de résonance est extraite pour les configurations de champs (h_x, H_y) et (h_y, H_x) (cf Figure 5.22 (e)).

La modélisation de la réponse magnétique en statique et en dynamique de la multicouche a été effectuée en utilisant le modèle *1D-Spiral* et les paramètres suivants : $H_{K,2j-1} = 18$ Oe et $H_{K,2j} = 26$ Oe avec $1 \leq j \leq 5$. Les valeurs de champs d'anisotropie sont proches de celles considérées pour la bicouche (3 : 3) (cf Table 5.3). Il est important de souligner que cette fois, un désalignement des axes d'anisotropie a été pris en compte : $\theta_{2j-1} = 10^\circ$ et $\theta_{2j} = 80^\circ$. L'épaisseur de chaque couche est supposée égale : $t_{2j-1} = t_{2j} = 50$ nm. La valeur de la constante d'échange reste inchangée : $A = 0.7 \times 10^{-11}$ J/m.

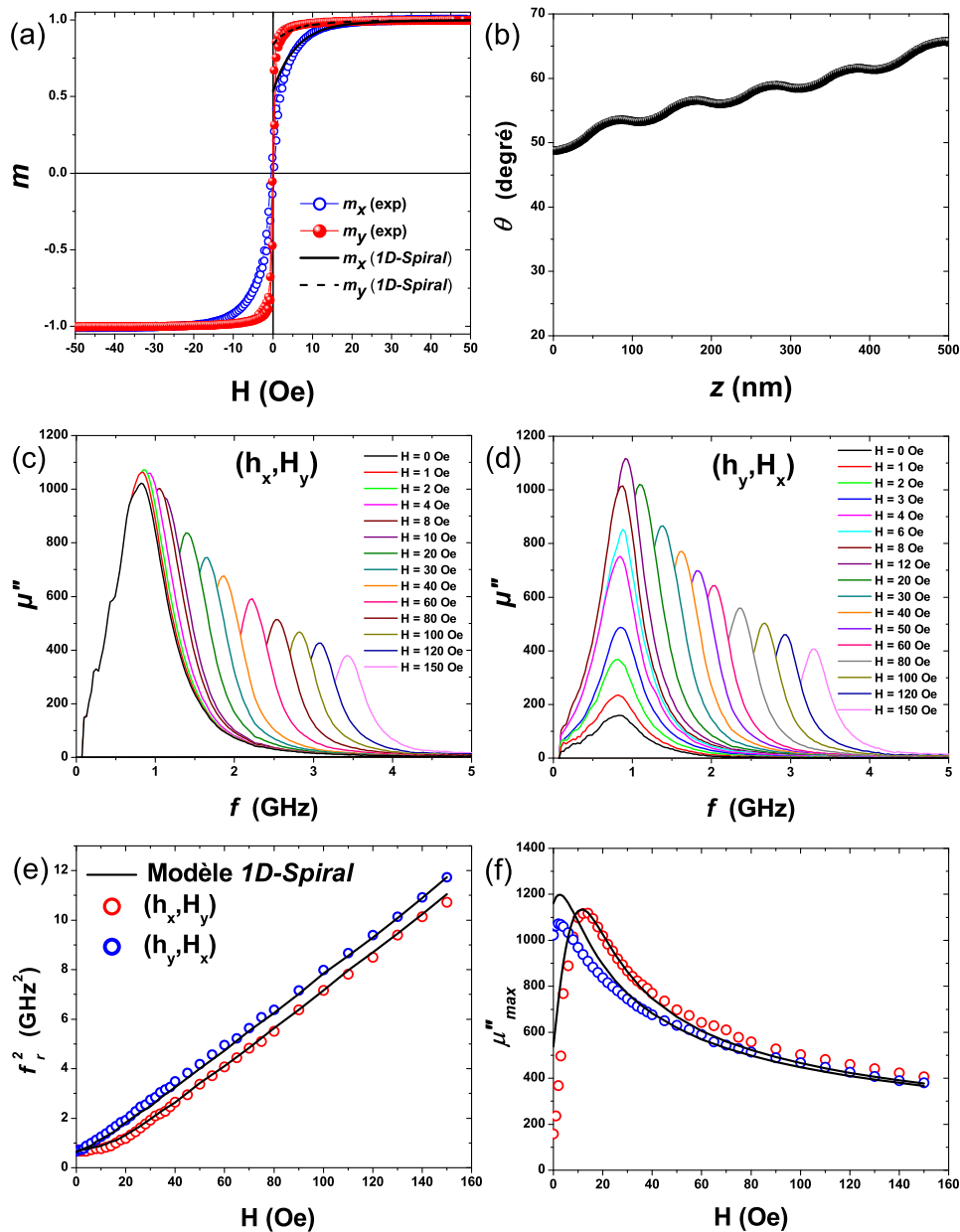


FIGURE 5.22 – Comportement en statique et en dynamique de l'aimantation : cycles d'hystérésis (a), profil d'aimantation simulé (b), perméabilité imaginaire expérimentale sous champ (h_x, H_y) (c) et (h_y, H_x) (d), $f_r^2(H)$ (e) et $\mu''_{max}(H)$ (f) expérimentales et simulées avec le modèle *1D-Spiral*.

Les courbes d'aimantation simulées miment le comportement des cycles d'hystérésis expérimentaux, et notamment la courbure de m_x . Un léger désaccord persiste à champs faibles en raison de la structure en domaines. Le profil d'aimantation associé présente 5 parois de domaine dans l'épaisseur de la multicouche, avec $\theta_1 = 48.78^\circ$ en $z = 0$ et $\theta_2 = 65.78^\circ$ en $z = t$. Les résultats modélisés de la fréquence de résonance sous champ reproduisent parfaitement les données expérimentales. Il en est de même pour le comportement de $\mu''_{max}(H)$ où le fait d'introduire des angles d'anisotropie $\theta_K \neq 0$ et 90° annihile la divergence de la perméabilité pour $H \approx H_K$. Il est également remarquable que le modèle prédit sous champ l'existence d'un seul et unique pic d'absorption, comme il est observé expérimentalement.

La production d'une multicouche à anisotropies croisées permet d'abaisser la fréquence de résonance, au contraire d'une monocouche déposée en incidence oblique qui l'augmente (cf Figure 4.4). Il est connu qu'un traitement thermique sous champ statique tournant induit une faible anisotropie uniaxe, voire une distribution d'anisotrope quasi-isotrope. Un effet similaire pourrait être recréé lors de la croissance de la couche par rotation du porte-échantillon sur 360° dans le but d'élaborer des couches minces magnétiques avec une anisotropie magnétique uniaxiale induite encore plus faible [148]. Le modèle micromagnétique *1D-Spiral* a été utilisé avec succès pour simuler le comportement sous champ d'un échantillon à forte dispersion d'aimantation, avec des paramètres voisins de la bicouche (3 : 3) et en ajoutant les angles d'anisotropie comme degré de liberté.

5.6 Discussion et Perspectives

Un modèle micromagnétique unidimensionnel a été développé afin de tenir compte de l'énergie d'échange et d'une distribution d'anisotropie en angle et en intensité dans l'épaisseur. Le modèle *1D-Spiral* a été validé en statique et en dynamique pour des couches magnétiques inhomogènes dont le profil d'anisotropie est imposé. Pour cela, des bicouches avec des anisotropies croisées à 90° ont été spécifiquement élaborées. De plus, des expériences de précession de neutron ont été menées dans le but de sonder le profil de l'aimantation dans l'épaisseur, lequel montre un accord satisfaisant avec celui obtenu à partir des mesures en statique et en dynamique. La complexité de la distribution d'aimantation aux surfaces, et celle sous-jacente en volume, a également été illustrée par les images Kerr de la structure en domaines magnétiques. De plus, les couches minces à forte dispersion d'aimantation se sont prêtées à la validation et à l'extension du domaine d'application de l'aimantation dynamiquement couplée pour des matériaux magnétiques inhomogènes.

Comme le suggère la multicouche à anisotropies croisées, induire une distribution d'anisotropie permet d'abaisser la fréquence de résonance et constitue une possibilité intéressante pour diminuer ou orienter l'anisotropie, en alternative aux traitements thermiques sous champ ou sous contrainte. Le comportement magnétique de la multicouche a été également reproduit avec le modèle *1D-Spiral*, ce qui laisse entrevoir toutes les possibilités qu'il offre.

Bien que les bicouches et la multicouche ont été déposées en statique et sur un substrat en verre afin de réduire au maximum les sources de dispersion, il est nécessaire d'introduire un désalignement des axes d'anisotropie, comme l'a montré la modélisation de la multicouche. Ces résultats mettent en exergue toute la difficulté d'élaborer des couches magnétiques douces microniques en imposant une distribution d'anisotropie connue ou au contraire avec la plus faible dispersion possible.

Maintenant que nous disposons d'un modèle micromagnétique unidimensionnel tenant compte d'une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur, la simulation du comportement magnétique d'une couche mince déposée au déroulé sur substrat polymère a été entreprise. Mais dès lors se pose la définition du profil d'anisotropie à considérer. Une tentative a été menée en utilisant la distribution d'anisotropie en

5.6. DISCUSSION ET PERSPECTIVES

angle et en intensité issue d'un dépôt statique (cf Figure 4.4). Les résultats simulés avec ce profil d'anisotropie sont comparés sur la Figure 5.23 aux résultats expérimentaux d'une couche déposée au déroulé et dans les mêmes conditions d'élaboration. Or, l'anisotropie de la couche déposée au déroulé est plus faible de quelques œersteds que celle de la couche dense du dépôt statique, qui représente l'essentielle de la réponse magnétique. L'origine de cet écart est associé au gradient de contrainte, à la dispersion d'aimantation ou au champ dipolaire. C'est pourquoi, une soustraction de 3 Oe a été opérée sur toutes les valeurs de champ d'anisotropie prises dans le modèle. Malgré cette correction, les courbes d'aimantation simulées diffèrent de celles expérimentales, notamment selon l'axe de difficile aimantation (cf Figure 5.23).

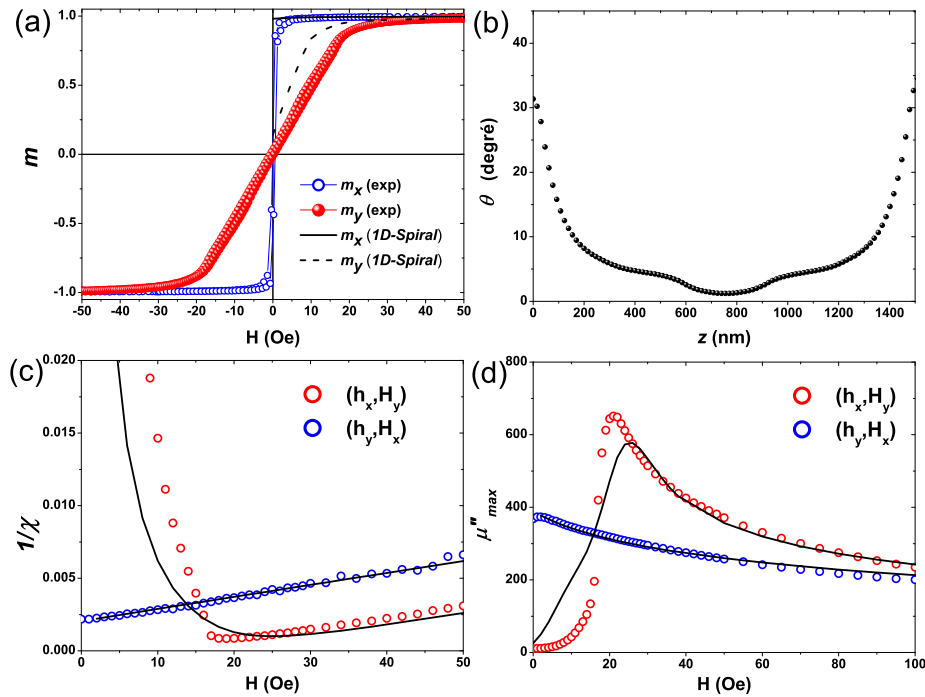


FIGURE 5.23 – Comportement en statique et en dynamique de l'aimantation d'une couche déposée au déroulé : cycles d'hystérésis (a), profil d'aimantation simulé (b), inverse de la susceptibilité sous champ (c) et $\mu''_{max}(H)$ (d) expérimentales et simulées avec le modèle *1D-Spiral*.

Comme attendu, le profil d'aimantation simulé est parabolique avec un angle de facile aimantation compris entre 1° et 33° . Que ce soit pour $1/\chi_i$ ou μ''_{max} , le modèle reproduit le comportement expérimental lorsque le champ statique est parallèle à l'axe d'anisotropie. Pour un champ transverse, le même désaccord est constaté que pour les courbes d'aimantation. Ces résultats montrent la limite de la démarche entreprise et toute la difficulté de formuler une distribution d'anisotropie réaliste pour de telles couches.

Ainsi la modélisation des couches magnétiques d'épaisseur micrométrique reste complexe en raison de l'existence d'une distribution d'anisotropie. Un effort a été porté sur l'introduction de l'énergie d'échange dans le calcul de la réponse statique et dynamique de l'aimantation. Le modèle *1D-Spiral* a été validé pour des échantillons à forte dispersion d'aimantation dont la distribution d'anisotropie est imposée. Néanmoins, la simulation des films magnétiques déposés au déroulé requiert une détermination fine du profil d'anisotropie. D'autres raffinements pourraient être effectués :

- en développant un modèle de contrainte afin d'exprimer explicitement l'anisotropie magnéto-élastique.
- en considérant la structure en domaines magnétiques comme autre source de perturbation de la réponse magnétique.

Conclusion

Dans le domaine des applications hyperfréquences, les matériaux utilisés doivent posséder des propriétés magnétiques douces qui dépendent en grande partie de l'anisotropie magnétique. L'anisotropie est fonction du procédé d'élaboration, de la composition et de l'état structural. Mes travaux de thèse ont porté sur l'étude de la réponse magnétique des matériaux doux développés au laboratoire et de l'anisotropie magnétique, au regard de son origine, de sa réorientation, de sa distribution ainsi que de son comportement en température.

L'influence de l'état structural sur les propriétés magnétiques des microfils nanocristallisés de composition Finemet gainés de verre a été illustrée. Le comportement en température de l'aimantation à saturation a été modélisé par une théorie de champ moyen avec un paramètre de désordre qui est associé à la nature biphasique de l'alliage nanocristallisé. La dépendance en température de l'anisotropie magnétique a été reportée. La modélisation révèle soit une limite du modèle de contraintes soit l'existence d'une anisotropie induite par les contraintes lors du traitement thermique.

L'influence de la composition sur les propriétés magnétiques et structurales des couches minces ferromagnétiques déposées par pulvérisation cathodique a été reportée pour les alliages binaires $\text{Co}_{100-x}\text{Nb}_x$ et $\text{Co}_{100-y}\text{Zr}_y$ ($5 < x, y < 20$ at.%). Des cibles composites ont été employées afin d'élaborer des films avec un gradient de composition dans la largeur lors d'un unique dépôt, et cela à moindre coût et temps. Ainsi a été rendue possible une étude détaillée des propriétés magnétiques en statique et en dynamique en fonction de la composition et des conditions d'élaboration. Bien que ces matériaux aient fait l'objet de nombreux travaux, cette étude reste essentielle comme le montre l'extrême sensibilité à la composition et aux conditions d'élaboration des coefficients de magnétostriction et notamment de l'aptitude à la réorientation de l'axe de facile aimantation. De part la forte corrélation entre l'anisotropie magnétique induite (origine et réorientation) et l'ordre local chimique et topologique, des caractérisations structurales ont été initiées dont les données EXAFS sont en cours d'interprétation.

CONCLUSION

Du fait de la technique d'élaboration, les couches magnétiques d'épaisseur micronique sont particulièrement sensibles à la distribution d'anisotropie. De ce fait, la modélisation de la réponse magnétique des couches douces pose le problème des approximations à poser, au regard du degré de distribution d'anisotropie d'une part et du rapport entre l'épaisseur et les longueurs magnétiques caractéristiques d'autre part.

Dans le cas de couches minces d'épaisseur micronique, une approximation avec *n-macrospins* sans interaction d'échange a été formulée de manière à tenir compte de la distribution d'anisotropie. Les différentes sources de dispersion liées au procédé d'élaboration ont été référencées et une méthode a été proposée afin de quantifier la distribution d'anisotropie en angle et en intensité. Les mesures en angle se révèlent essentielles pour discriminer un désalignement de l'axe de facile aimantation de la dispersion d'aimantation. Le calcul de la susceptibilité initiale sous champ et en angle avec la distribution d'anisotropie en intensité expérimentale a montré un bon accord avec les résultats expérimentaux. Il serait intéressant de mener le même exercice sur la totalité du domaine spectral et en tenant compte simultanément de la dispersion en angle et en intensité.

Lorsque l'épaisseur des couches est moindre ou la distribution d'anisotropie est forte, il est nécessaire d'introduire l'énergie d'échange. Pour ce faire, un modèle micromagnétique unidimensionnel a été développé en instaurant une distribution d'anisotropie en angle et en intensité dans l'épaisseur. À partir du diagramme d'état uniforme/non-uniforme, des bicouches à anisotropies croisées ont été spécifiquement élaborées dans le but d'imposer une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur connue. Le modèle *1D-Spiral* s'est révélé pertinent pour simuler le comportement magnétique en statique et en dynamique d'une bicouche à forte dispersion d'aimantation. Dans la continuité, des expériences de spectrométrie de précession ont été menées afin de sonder le profil d'aimantation dans l'épaisseur, dont l'accord avec celui obtenu à partir des mesures hyperfréquences est satisfaisant. Cet échantillon a également contribué à étendre le domaine d'applications de l'aimantation dynamiquement couplée aux matériaux magnétiques inhomogènes. Dans le souci de réduire l'anisotropie magnétique, une multicouche à anisotropies croisées a été élaborée dont le comportement magnétique a été simulé avec le modèle *1D-Spiral*. En alternative aux traitements thermiques sous champ ou sous contrainte, l'élaboration de multicouches avec une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur est une solution séduisante pour réduire l'anisotropie magnétique.

La simulation du comportement magnétique d'une couche micronique déposée au déroulé a été entreprise avec le modèle *1D-Spiral*. Bien que ce modèle comporte la physique nécessaire, toute la difficulté réside maintenant à exprimer une distribution d'anisotropie dans l'épaisseur réaliste.

Annexes

Annexe A

Unités et constantes utiles

A.1 Conversions entre le système CGS et le Système International (SI)

Grandeur	CGS	Conversion	SI
Masse	g	10^{-3}	kg
Longueur	cm	10^{-2}	m
Temps	s	1	s
Induction magnétique	G	10^{-4}	T
Champ magnétique	Oe	$10^3/4\pi$	A/m
Moment magnétique	emu, erg/G	10^{-3}	A.m ²
Aimantation	erg/cm ³	10^{-3}	A/m
Aimantation à saturation ($4\pi M_s$)	Gauss	$4\pi \cdot 10^{-3}$	A/m
Énergie	erg	10^{-7}	J

A.2 Constantes physiques

Constante	Notation	Valeur en cgs	Valeur en SI
Constante de Planck	h	6.625×10^{-27} erg.s	6.625×10^{-34} J.s
	$\hbar = \frac{h}{2\pi}$	1.054×10^{-27} erg.s	1.054×10^{-34} J.s
Constante de Boltzmann	k_B	1.381×10^{-16} erg/deg	1.381×10^{-23} J/deg
Charge de l'électron	e	-1.602×10^{-20} emu	-1.602×10^{-19} C
Masse de l'électron	m_e	9.109×10^{-28} g	9.109×10^{-31} kg
Rapport gyromagnétique	$\gamma = \frac{ge}{2m_e}$	1.758×10^7 rad/s/G	1.758×10^{11} C ⁻¹ .kg ⁻¹
de l'électron libre e/m		(= Oe ⁻¹ .s ⁻¹)	(= T ⁻¹ .s ⁻¹)
Perméabilité du vide	μ_0	—	$4\pi \times 10^{-7}$ H/m = 1.26×10^{-6} N/A ²
Permittivité du vide	ε_0	—	$8,854187.10^{-12}$ F/m
Magnétron de Bohr	$\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e c}$	9.274×10^{-21} erg/Oe (= emu)	9.274×10^{-22} J/T (= A.m ²)
Facteur de Landé de l'électron libre	$g = 2\{1 + \alpha/(2\pi) - 0.328 \alpha^2/\pi^2\}$	2.002319	2.002319
Vitesse de la lumière dans le vide	c	2.998×10^{10} cm/s	2.998×10^8 m/s

Annexe B

Techniques de caractérisation

B.1 Analyse de composition par spectrométrie d'émission atomique par plasma à couplage inductif (ICP-AES)

L'échantillon à analyser est mis en solution sous l'effet de l'acide nitrique et de l'acide chlorhydrique. La solution obtenue est projetée sous forme de fines gouttelettes dans un plasma d'argon dans le but de produire des ions. La longueur d'onde de chaque ion est une signature de l'élément, dont la sélection est effectuée à l'aide d'un spectromètre. L'intensité du signal détectée est proportionnelle à la concentration de l'élément dont la mesure quantitative est réalisée à partir d'étalons. Cette technique d'analyse physico-chimique m'a permis de contrôler les compositions des cibles utilisés lors des dépôts par pulvérisation cathodique ainsi qu'à déterminer la composition des films minces métalliques.

B.2 Mesure d'épaisseur d'une couche mince

B.2.1 Méthode par profilométrie

Un substrat rigide (verre) est fixé sur le substrat polymère avec un scotch recouvrant la moitié de sa surface, de manière à créer une marche une fois le scotch retiré après le dépôt. La mesure de la marche est réalisée avec un profilomètre mécanique à pointe, précis à 10 nm.

B.2.2 Méthode par pesée

Lorsque la couche mince métallique est déposée sur un substrat souple, la mesure d'épaisseur avec le profilomètre mécanique est imprécise parce que la pointe s'enfonce dans le polymère. Pour cette raison, une autre procédure dite par pesée est opérée. Un échantillon de dimension $S = 100 \times 100 \text{ mm}^2$ est prélevé à la médiane de la largeur du film déposé. L'épaisseur du film métallique t_f de densité d_f vaut :

$$t_f = \frac{M_{f+s} - M_s}{d_f S} \quad (\text{B.1})$$

avec M_{f+s} et M_s les masses respectives du film déposé et du substrat seul. À titre d'exemple, l'incertitude de mesure pour un film métallique déposé sur un substrat de $12 \text{ }\mu\text{m}$ varie de 19.0 % à 2.9 % pour un film d'épaisseur $0.24 \text{ }\mu\text{m}$ et $1.90 \text{ }\mu\text{m}$ [63].

B.3 Mesure du rayon de courbure

Un film métallique déposé sur un substrat souple s'enroule spontanément sur lui-même en raison des contraintes internes dans l'épaisseur de la couche. La mesure du rayon de courbure est effectuée sur des éprouvettes de dimension $3 \times 20 \text{ mm}^2$, prélevées parallèlement au sens de déroulé du film (x) et perpendiculairement (y) dans le but d'observer le caractère isotrope ou anisotrope de la contrainte. Par convention, on définit le rayon de courbure r_c positif lorsque le film métallique est à l'intérieur de l'enroulement et r_c négatif lorsque le film est l'extérieur. Le signe du rayon de courbure renseigne sur l'état de contrainte au sein du film (tension - compression).

B.4 Mesure de la résistivité électrique

La résistivité électrique des couches minces métalliques est mesurée par la méthode dite des quatre pointes en ligne. Les quatre pointes sont reliées entre elles deux à deux et sont mises en contact avec la surface du film. Un courant d'intensité I circule entre les deux pointes extrêmes en passant par l'échantillon de manière à ce que les deux pointes centrales mesurent la chute ohmique via la tension U . La

résistivité de l'échantillon (ρ en $\Omega.m$) s'exprime :

$$\rho = \frac{U}{I} t \frac{\pi}{\ln(2)} \quad (B.2)$$

avec t l'épaisseur du film métallique et $\pi/\ln(2)$ un facteur de forme lié à la géométrie du capteur utilisé.

B.5 Caractérisation des propriétés magnétiques

B.5.1 En statique : magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

Un magnétomètre à échantillon vibrant permet la mesure du cycle d'hystérésis à partir duquel sont déterminés l'aimantation à saturation, l'aimantation rémanente, le champ coercitif et le champ d'anisotropie. Ce dispositif expérimental basé sur l'induction magnétique a été introduit par Foner à la fin des années 60. Des bobines magnétiques créent une excitation homogène continue ou lentement variable afin que l'échantillon se comporte comme un dipôle magnétique vibrant. Les variations de flux induites par le dipôle sont détectées par des bobines réceptrices qui produisent une tension proportionnelle au moment global de l'échantillon. Le facteur de proportion entre la tension et le moment est déterminé à partir d'un étalon d'aimantation connue. Afin de réaliser un cycle d'hystérésis, l'échantillon est placé au centre de deux bobines magnétiques qui appliquent un champ statique de -15 kOe à +15 kOe pour le VSM du laboratoire. L'ajout d'un four permet des mesures en température comprises entre 300 K à 1000 K.

B.5.2 En dynamique : mesure par perturbation de spire

La mesure de perméabilité hyperfréquence nécessite d'exciter l'aimantation du matériau avec un champ alternatif transverse. Pour ce faire, une technique basée sur la variation de flux au sein d'une bobine de mesure a été retenue [149]. Le dispositif expérimental se compose d'une mono-spire traversée par un courant hyperfréquence qui crée le champ a.c. et d'un analyseur de réseau HP8753C qui mesure les coefficients de réflexion (cf Figure B.1). Le calibrage du système s'effectue avec trois charges résistives et capacitives connectées à l'analyseur. Afin de déconvoluer le signal de la couche métallique du signal lié au substrat, on effectue soit une mesure à vide avec

B.5. CARACTÉRISATION DES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

le substrat uniquement soit une mesure sous champ afin de saturer la couche magnétique. Le fait de placer l'échantillon à mesurer à l'intérieur de la spire perturbe le flux magnétique et modifie l'impédance de la spire. La gamme de fréquence de mesure de 10 MHz à 3 GHz a été portée jusqu'à 6 GHz [150]. De nombreuses adaptations ont été apportées à la spire de manière à mesurer la perméabilité hyperfréquence sous champ magnétique statique, en température et sous champ, sous contrainte et au cours de ma thèse en rotation.

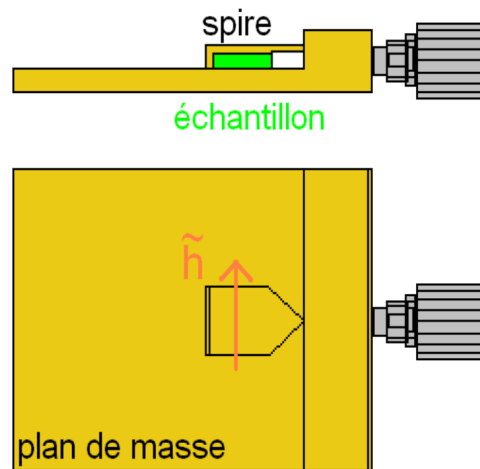


FIGURE B.1 – Schéma d'une mono-spire.

B.5.2.1 Mesure spire sous champ magnétique statique

Deux jeux de bobine d'Helmholtz ont été ajoutés autour de la spire dans le but d'appliquer un champ magnétique statique dans le plan de la couche jusqu'à 160 Oe (cf Figure B.2). Le champ d.c. appliqué est longitudinal ou transverse au champ a.c. de la spire.

B.5.2.2 Mesure spire en température et sous champ magnétique statique

Au dispositif précédent ont été ajoutés une enceinte assurant un refroidissement à l'azote liquide et un crayon chauffant afin de mesurer la perméabilité hyperfréquence de 90 K à 500 K [151]. Chaque mesure est précédée d'un blanc sous champ afin de corriger les variations en température des caractéristiques de la spire. Ce dispositif

B.5. CARACTÉRISATION DES PROPRIÉTÉS MAGNÉTIQUES

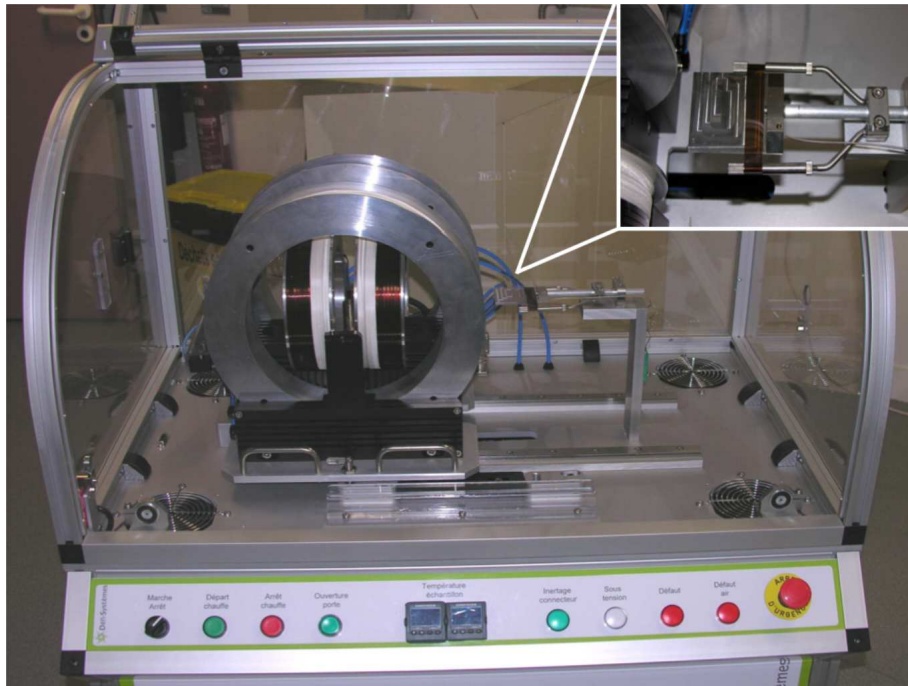


FIGURE B.2 – Banc de mesure spire sous champ et en température.

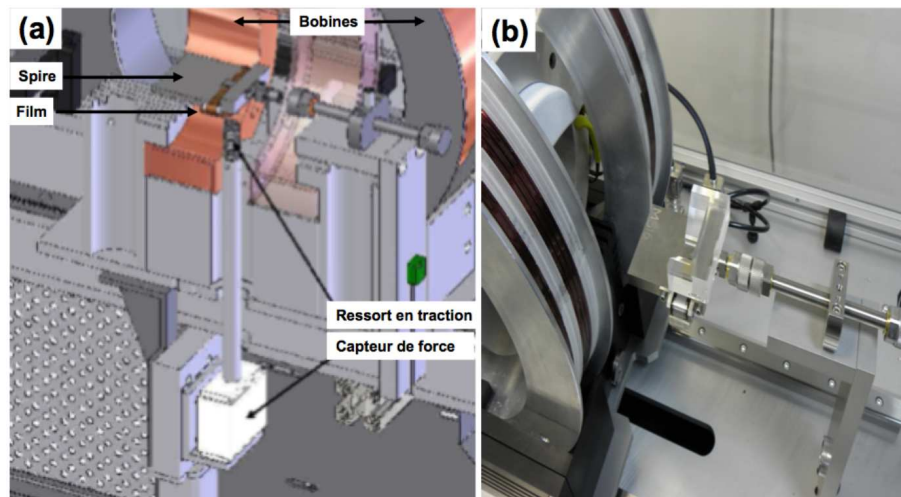


FIGURE B.3 – Schéma (a) et photographie (b) du banc de mesure spire sous contrainte.

permet de suivre la cinétique de réorientation de l'axe de facile aimantation au cours d'un traitement thermomagnétique sous champ statique transverse.

B.5.2.3 Mesure spire sous contrainte

Ce dispositif permet la mesure du coefficient de magnétostriction à saturation noté λ_s de manière indirecte (cf Figure B.3). En effet, la variation de la fréquence de résonance en fonction de la contrainte σ appliquée sur la couche mince suit la loi suivante :

$$f_r^2 = \frac{2\gamma^2}{\mu_0} \left(K_0 - \frac{3}{2} \lambda_s \sigma \right) \quad (\text{B.3})$$

Le coefficient directeur de la droite est proportionnel au coefficient de magnétostriction. Pour un matériau à magnétostriction négative, la contrainte appliquée tend à aligner l'aimantation dans une direction perpendiculaire à celle-ci. Au contraire, pour un matériau à magnétostriction positive, l'aimantation tend à s'aligner le long de la contrainte exercée : la perméabilité magnétique tend vers 1 et ne permet plus une mesure précise de la fréquence de résonance. Pour cette raison, un champ magnétique statique H_0 supérieur au champ d'anisotropie est appliqué de manière à maintenir la direction de l'aimantation perpendiculaire à la direction de la contrainte extérieure. En pratique, une bandelette de film ferromagnétique ($20 \times 9 \text{ mm}^2$) est placée dans la spire et les extrémités du film sont fixées au palonnier. Puis la spire est positionnée au centre des jeux de bobines de manière à ce que le ressort en traction vienne s'accrocher au palonnier (cf Figure B.3). Le capteur de force assure la traction avec un pas minimum de 0.1 N.

B.6 Imagerie des domaines magnétiques par effet Kerr

Les techniques magnéto-optiques sont particulièrement adaptées pour la visualisation de la structure en domaines magnétiques des couches minces. En effet, les couches minces à base cobalt présentent une surface spéculaire et de grands domaines magnétiques (0.1 – 1 mm). L'effet Kerr correspond à la réflexion d'une onde électromagnétique polarisée linéairement sur un matériau aimanté. Du fait de l'interaction magnéto-optique, l'aimantation induit une rotation du plan de polarisation

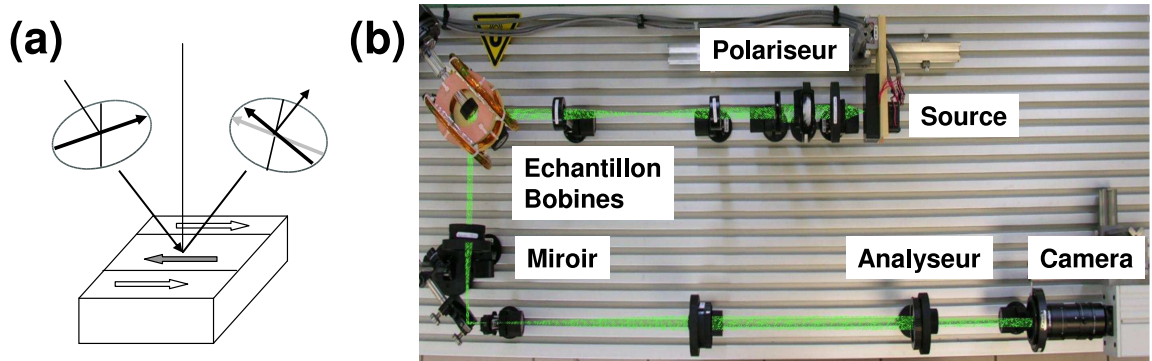


FIGURE B.4 – Schéma (a) et photographie (b) du banc de mesure magnéto-optique par effet Kerr longitudinal.

de la lumière. Le banc de mesure du laboratoire exploite notamment l'effet Kerr longitudinal pour lequel l'aimantation est dans le plan de l'échantillon et dans le plan d'incidence (cf Figure B.4). Une source de lumière composée de 4 LED émet un faisceau de lumière ($\lambda = 520 \text{ nm}$), lequel est polarisé après son passage au travers d'un polariseur. L'onde électromagnétique polarisée linéairement est réfléchi sur la surface magnétique de l'échantillon avec un angle d'incidence de 45° . Puis, une composante du champ électromagnétique de l'onde réfléchi est sélectionnée par l'analyseur. En fin de parcours optique est positionnée une caméra numérique afin d'acquérir les images. Plusieurs jeux de bobines d'Helmholtz sont également disposés afin de compenser le champ terrestre. Ces bobines permettent également d'appliquer un champ transverse ou longitudinal dans le plan de l'échantillon ($H_0 < 50 \text{ Oe}$) afin de suivre l'évolution sous champ de la structure en domaines magnétiques. Dans le but d'exacerber le contraste, une soustraction d'images est réalisée entre une série d'images acquises sous champ (saturation de l'échantillon) et sans champ. La résolution spatiale est de $50 \mu\text{m}$ et une profondeur de pénétration de la lumière de 40 nm pour un matériau métallique.

Annexe C

Publications et communications

Publications

- *Stabilité en température des propriétés magnétiques dynamiques de microfils gainés de verre : influence de la composition.* V. Dubuget, A-L. Adenot-Engelvin et F. Bertin, Acte des 10^{ème} Journées de Caractérisation Microondes et Matériaux, JCMM Limoges - Avril 2008 - France
- *How to retrieve more information on magnetic films from microwave permeability measurements.* O. Acher , V. Dubuget et S. Dubourg, IEEE Transactions on Magnetism, Vol. 44, No. 11, November 2008.
- *Sum rules and figures of merit on the microwave permeability of nanocrystalline microwires.* J. Torrejon , A-L. Adenot-Engelvin, F. Bertin, V. Dubuget, O. Acher et M. Vázquez, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Vol. 321, pp. 1227-1230, 2009.
- *Magnetization dynamics of soft films with thickness-dependent anisotropy.* V. Dubuget, A. Thiaville, F. Duverger, S. Dubourg, O. Acher, et A-L. Adenot-Engelvin, Physical Review B, Vol. 80, p. 134412, 2009.
- *Magnetic anisotropy dispersion with exchange coupling in soft ferromagnetic thin films.* V. Dubuget, S. Dubourg, P. Thibauudeau et F. Duverger, Acceptée dans IEEE Transactions on Magnetism

- *Domain and wall structures in thick magnetic bilayers with crossed anisotropies.*
V. Dubuget et A. Thiaville, F. Duverger, S. Dubourg et A-L. Adenot-Engelvin, Soumise dans Journal of Applied Physics.
- *Probing magnetic domain wall profiles by neutron spin precession.* P. Thibau-deau, V. Dubuget, A. Thiaville et F. Ott, En préparation pour publication dans Europhysics Letters.

Communications

- *Stabilité en température des propriétés magnétiques dynamiques de microfils gainés de verre : influence de la composition.* V. Dubuget, A-L. Adenot-Engelvin et F. Bertin, 10^{ème} Journées de Caractérisation Microondes et Matériaux, JCMM Limoges - Avril 2008 - France - Oral
- *How to retrieve more information on magnetic films from microwave permeability measurements.* V. Dubuget, O. Acher et S. Dubourg, INTERMAG Madrid - Mai 2008 - Espagne - Oral
- *Temperature behavior of the magnetic anisotropy of nanocrystallized Finemet-based glass-coated microwires.* A-L. Adenot-Engelvin, V. Dubuget, P. Thibau-deau et F. Bertin, INTERMAG Madrid - Mai 2008 - Espagne - Oral
- *Dynamique de l'aimantation dans des films magnétiques doux amorphes.* V. Dubuget, A. Thiaville, F. Duverger, S. Dubourg, O. Acher et A-L. Adenot-Engelvin, Congrès de la Société Française de Physique, SFP École Polytechnique - Juillet 2009 - France - Poster
- *Determination of the magnetization distribution in soft magnetic films using microwave permeability measurements.* M. Ledieu, V. Dubuget, S. Dubourg et O. Acher, 19th Soft magnetic material conference, SMM Turin - Septembre 2009 - Italie - Conférence invitée

Bibliographie

- [1] S. Chikazumi. *Physics of ferromagnetism*. Oxford Science Publication.
- [2] Springer-Verlag, editor. *Magnetic properties of metals*, volume 19. Landolt-Börnstein, 1986.
- [3] D.M. Paige, B. Szpunar, and B.K. Tanner. The magneto-crystalline anisotropy of Cobalt. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 44 :239–248, 1984.
- [4] A. Hubert and R. Schäfer. *Magnetic domains : The analysis of magnetic microstructures*. Springer, 1998.
- [5] J. A. Osborn. Demagnetizing factors of the general ellipsoid. *Physical Review*, 67(11-12) :351–357, 1945.
- [6] A. Aharoni. Demagnetizing factors for rectangular ferromagnetic prisms. *Journal of Applied Physics*, 83(6), 1998.
- [7] E.C. Stoner and E.P. Wohlfarth. *Trans. Roy. Soc.*, 40, 2000.
- [8] M. Fähnle, D. Steiauf, and J. Seib. The Gilbert equation revisited : anisotropic and non local damping of magnetization dynamics. *J. Phys. D : Appl. Phys.*, 41 :164014, 2008.
- [9] D. Pain. *Relations entre propriétés magnétiques statiques et les propriétés en hyperfréquences de couches minces ferromagnétiques*. PhD thesis, Université de Versailles Saint-Quentin en Yvelines, 1999.
- [10] J. L. Snoek. *Physica*, 14 :207, 19788.
- [11] O. Acher and A.L. Adenot. Bounds on the dynamic properties of magnetic materials. *Physical Review B*, 62(17) :11324–11327, 2000.
- [12] O. Acher and S. Dubourg. Generalization of Snoek’s law to ferromagnetic films and composites. *Physical review B*, 77 :104440, 2008.
- [13] O. Acher, V. Dubuget, and S. Dubourg. *IEEE Transactions on Magnetics*, 44 :2842, 2008.

- [14] J. Torrejon, A-L. Adenot-Engelvin, F. Bertin, V. Dubuget, O. Acher, and M. Vazquez. Sum rules and figures of merit on the microwave permeability of nanocrystalline microwires. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 321 :1227–1230, 2009.
- [15] P. Weiss. L’hypothèse du champ moléculaire et la propriété ferromagnétique. *J. Phys. Rad.*, 6 :661–690, 1907.
- [16] Anne-Lise Adenot-Engelvin, Christophe Dudek, Frederic Bertin, and Olivier Acher. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 316(2) :e831–e833, 2007.
- [17] J. Velazquez, M. Vazquez, A. Hernando, H. T. Savage, and M. Wun-Fogle. Magnetoelastic anisotropy in amorphous wires due to quenching. *Journal of Applied Physics*, 70(10) :6525–6527, 1991.
- [18] A. F. Cobeno and A. Zhukov. Magnetoelastic sensor based on gmi of amorphous microwire. *Sensors and Actuators*, A91 :95–98, 2001.
- [19] S. Deprot. *Élaboration de micro-filaments composites : des caractéristiques physico-chimiques aux propriétés magnétiques*. PhD thesis, Université de Tours, 2003.
- [20] C. Dudek. *Étude de matériaux hyperfréquences innovants : des microfils nanocristallisés aux composites magnétiques*. PhD thesis, Université de Tours, 2006.
- [21] G. F. Taylor. A method of drawing metallic filaments and a discussion of their magnetic properties, 1924.
- [22] H. Wiesner and J. Schneider. Magnetic properties of amorphous Fe-P alloys containing Ga, Ge and As, 1974.
- [23] M.E. McHenry, M.A. Willard, and D.E. Laughlin. Amorphous and nanocrystalline materials for applications as soft magnets. *Progress in Materials Science*, 44(4) :291–433, 1999.
- [24] G. Herzer. *Magnetic hysteresis in novel materials*, volume 338.
- [25] Y. Yoshizawa, S. Oguma, and K. Yamauchi. New Fe-based soft magnetic alloys composed of ultrafine grain structure. *Journal of Applied Physics*, 64(10) :6044–6046, 1988.
- [26] C. Gomez-Polo, P. Marin, L. Pascual, A. Hernando, and M. Vazquez. Structural and magnetic properties of nanocrystalline $\text{Fe}_{73.5-x}\text{Co}_x\text{Si}_{13.5}\text{B}_9\text{CuNb}_3$ alloys. *Physical Review B*, 65 :024433, 2001.

- [27] A. Makino, A. Inoue, and T. Masumoto. Nanocrystalline soft magnetic Fe-M-B (M=Zr, Hf, Nb) alloys produced by crystallization of amorphous phase. *Materials Transactions*, 36(7) :924–938, 1995.
- [28] M.A. Willard, M.Q. Huang, M.E. McHenry, J.O. Cross, and V.G. Harris. Magnetic properties of HITPERM (Fe, Co)₈₈Zr₇B₄Cu₁ magnets. *Journal of Applied Physics*, 85(8) :4421–4423, 1999.
- [29] Y. Yoshizawa and K. Yamauchi. *Materials Research Society Symposia Proceedings*, 232(183), 1991.
- [30] Kun Peng. High-temperature magnetic properties of Fe-based nanocrystalline alloy. *Materials Chemistry and Physics*, 89 :138–142, 2005.
- [31] G. Herzer. *Nanocrystalline soft magnetic alloys*, volume 10. Handbook of Magnetic Materials.
- [32] T. Kulik, G. Vlasak, and R. Zuberek. Correlation between microstructure and magnetic properties of amorphous and nanocrystalline Fe_{73.5}Cu₁Nb₃Si₁₆B₆. *Materials Science and Engineering*, A226-228 :701–707, 1997.
- [33] M. Tejedor. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 185 :61–65, 1998.
- [34] C. Gomez-Polo, J. I. Perez-Landazabal, V. Recarte, J. Campo, P. Marin, M. Lopez, A. Hernando, and M. Vazquez. High-temperature magnetic behavior of FeCo-based nanocrystalline alloys. *Physical Review B*, 6601(1) :2401, 2002.
- [35] Y. Han, Z. Wang, X. Che, X. Chen, W. Li, and Y. Li. Influence of Co content on the structure and magnetic permeability of nanocrystalline (Fe_{1-x}Co_x)Cu₁Nb₃Si_{13.5}B₉ alloys. *Material Science and Engineering B*, 156 :57–61, 2009.
- [36] J. Zhu, N. Clavaguera, M. T. Clavaguera-Mora, and W. S. Howells. Neutron diffraction analysis on finemet alloys. *Journal of Applied Physics*, 84(12) :6565–6569, 1998.
- [37] P. Allia, M. Baricco, P. Tiberto, and F. Vinai. *Journal of Applied Physics*, 74(5) :3137–3143, 1993.
- [38] G. Herzer. Grain size dependence of coercivity and permeability in nanocrystalline ferromagnets. *IEEE Transactions on Magnetism*, 26(1397), 1990.
- [39] G. Buttino. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 170 :211–218, 1997.

- [40] R. S. Turtelli. *IEEE Transactions on Magnetism*, 36 :508–512, 2000.
- [41] F. Mazaleyrat. *Materials Science Forum*, 269-272 :559–564, 1998.
- [42] K. Handrich. *Phys. Stat. Sol. (b)*, 32 :K55–K58, 1973.
- [43] T. Kaneyoshi. *J. Phys. C : Solid State Physics*, 6 :3130, 1973.
- [44] K.A. Gallagher. *Journal of Applied Physics*, 85 :5130, 1999.
- [45] R. C. O’Handley. *Modern Magnetic Materials : Principles and Applications*. John Wiley et Sons, 1999.
- [46] R.C. O’Handley. *Journal of Applied Physics*, 62(R15), 1987.
- [47] A. V. Torcunov. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 196-197 :835, 1999.
- [48] S.A. Baranov. *Fisika Metall. Metalloved*, 1989.
- [49] A.S. Antonov. *Journal of Applied Physics D : Applied Physics*, 33 :1161, 2000.
- [50] A.P. Zhukov. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 151 :132, 1995.
- [51] A. Slawska-Waniewska and H. K. Lachowicz. Magnetostriction in soft magnetic nanocrystalline materials. *Scripta Materialia*, 48(7) :889–894, 2003.
- [52] V. Zhukova, J.M. Blanco, A. Zhukov, and J. Gonzalez. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 34 :L113–L116, 2001.
- [53] J.H. Van Vleck. *J. Phys. Rad.*, 20 :128, 1959.
- [54] C. Kittel and J.H. Van Vleck. *Physical Review*, 118 :1231, 1960.
- [55] E.R. Callen and H.B. Callen. *J. phys. chem. sol.* 27 :1271, 1966.
- [56] W.R. Grove. On the electro-chemical polarity of gases. *Philosophical Transactions*, 142 :87–102, 1852.
- [57] G.M. Turner, I.S. Falconer, B.W. James, and D.R. McKenzie. *Journal of Applied Physics*, 65(9) :3671–3679, 1989.
- [58] B. Viala, M.K. Monor, and J.A. Barnard. *Journal of Applied Physics*, 80 :3941, 1996.
- [59] K. Shintaku, K. Yamakawa, and K. Ouchi. High-Bs Fe–Co–Al–O soft magnetic films. *Journal of Applied Physics*, 93(10) :6474–6476, 2003.
- [60] E.W. Soo, T.J. Zhou, and J.P. Wang. FeCoC film as the soft magnetic underlayer for perpendicular media. *Journal of Applied Physics*, 91(10) :8019–8021, 2002.

- [61] V. Edon, S. Dubourg, J. Vernières, B. Warot-Fonrose, and J-F. Bobo. Effects of C addition in $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ and $\text{Fe}_{9.5}\text{Co}_{90.5}$ soft magnetic films. *Journal of Applied Physics*, To be published, 2010.
- [62] S. Otomo. Magnetic properties and thermal stability of Co-TM-Zr (TM=Nb, Ta, Mo, W, and Ni) amorphous sputtered films for magnetic heads. *Journal of Materials Science*, 31 :3805–3812, 1996.
- [63] S. Queste. *Élaboration de couches minces ferromagnétiques à forte perméabilité pour applications hyperfréquences*. PhD thesis, Université François Rabelais Tours, 2004.
- [64] M. Naili. *Élaboration et études des propriétés magnétiques et structurales des couches minces amorphes du type $\text{Co}_{1-x-y}\text{Zr}_x\text{M}_y$ avec $M = \text{Zr}, \text{Nb}, \text{Ti}, \text{Pt}$* . PhD thesis, Paris VI, 1990.
- [65] T. Egami, J. Haimovich, and Y. Suzuki. Bond orientational anisotropy in metallic glasses observed by x-ray diffraction. *Physical Review B*, 35(5) :2162–2168, 1987.
- [66] N.S. Kazama, H. Fujimori, and K. Hirose. Zero magnetostriction in amorphous Co-M-Nb alloys with high saturation magnetization. *IEEE Transactions on Magnetics*, 18(6) :1185–1187, 1982.
- [67] T. Jagienlinski. Magnetic and galvanomagnetic properties of amorphous CoZr thin films. *Journal of Applied Physics*, 61(8) :3237–3229, 1987.
- [68] T. Tushima, A. Tago, and C. Nishimura. Magnetic-properties of CoZr amorphous films prepared by low-energy ion-beam sputtering. *IEEE Transactions on Magnetics*, 22(5) :1110–1112, 1986.
- [69] J.I. Guzman and M.H. Kryder. Effect of deposition parameters on rf sputtered CoZr and CoZrRe thin films for magnetic recording heads. *Journal of Applied Physics*, 61(8) :3240–3242, 1987.
- [70] Y. Maehata, S. Tsunashima, and S. Uchiyama. Induced anisotropy of Co-Zr and Co-Ti amorphous films. *IEEE Transactions on Magnetics*, 22(5) :1107–1109, 1986.
- [71] H. Sakakima. Properties of amorphous alloy films mainly composed of Co-Nb. *IEEE Transactions on Magnetics*, 19(2) :131–135, 1983.
- [72] K. Hayashi, M. Hayakawa, Y. Ochiai, H. Matsuda, W. Ishikawa, Y. Iwakawa, and K. Aso. Magnetic and other properties and sputtering behavior of Co-

- based amorphous alloy films. *Journal of applied physics*, 61(8) :2983–2992, 1987.
- [73] F. Xiaolong, X. Desheng, L. Min, Z. Zhengmei, G. Dangwei, J. Changjun, and W. Jianqiang. In situ fabrication of $\text{Co}_{90}\text{Nb}_{10}$ soft magnetic thin films with adjustable resonance frequency from 1.3 to 4.9 GHz. *Applied Physics Letters*, 92(22) :222505, 2008.
- [74] Y.A. Babanov, A.V. Ryazhkin, A.F. Sidorenko, and L.A. Blaginina. A correction of EXAFS experimental spectra on core level width. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 405(2-3) :378–381, 1998.
- [75] U. K. Rossler and H. Teichler. Molecular dynamics simulations of supercooled and amorphous $\text{Co}_{100-x}\text{Zr}_x$: Atomic mobilities and structural properties. *Physical Review E*, 61(1) :394–402, 2000.
- [76] P.H. Gaskell. A new structural model for transition metal-metalloid glasses. *Nature*, 276 :484–485, 1978.
- [77] V.P. Moiseev. *ISV. Akad. Nauk. SSSR Ser. Fiz*, 378, 1962.
- [78] G.S. Cargill. *J. Appl. Phys.*, 41 :2248, 1970.
- [79] J. Dixmier. *Thèse d’Etat Orsay*. PhD thesis, 1969.
- [80] M.H. Cohen and D. Turnbull. *Nature*, 203 :964, 1964.
- [81] J.D. Bernal. *Proc. Roy. Inst.*, 37 :355, 1959.
- [82] J.D. Bernal. *Proc. Roy. Inst.*, 280 :299, 1964.
- [83] C.H. Bennet. *Journal of Applied Physics*, 43 :2727, 1972.
- [84] J.F. Sadoc and J. Dixmier. *J. Non Cryst. Solids*, 11 :179, 1972.
- [85] C. Briant. *Faraday discuss. Chem. Soc.*, 61 :25, 1975.
- [86] P.H. Gaskell. A new structural model for amorphous transition metal silicides, borides, phosphides and carbides. *J. Non Cryst. Solids*, 32 :207, 1979.
- [87] F. Machizaud, F.A. Kuhnast, and J. Flechon. *Ann. chim. Paris*, 3 :177, 1978.
- [88] T. Hamada and F.E. Fujita. *Japanese Journal of Applied Physics*, 21(7) :981, 1982.
- [89] D.B. Miracle. A structural model for metallic glasses. *Nature*, 3 :697, 2004.
- [90] P. Thibaudau and J. Gale. An embedded-atom method model for liquid Co, Nb, Zr and supercooled binary alloys. *arXiv*, 0809.0198, 2008.

- [91] R. Car and M. Parinello. *Phys. Rev. Lett.*, 25 :2471, 1985.
- [92] H.W. Sheng, W.K. Luo, F.M. Alamgir, J.M. Bai, and E. Ma. Atomic packing and short-to-medium range order in metallic glasses. *Nature*, 439 :419 – 425, 2006.
- [93] I.A. Blech and B.L. Averbach. *Physical Review*, 137(4A), 1965.
- [94] G. Placzek. *Physical Review*, 86 :377, 1952.
- [95] N. Heiman and N. Kazama. Concentration dependence of the Co moment in amorphous alloys of Co with Y, La, and Zr. *Physical Review B*, 17(5) :2215–2220, 1978.
- [96] J. Friedel. *Suppl. Del Nuovo Cimento VII*, 287, 1958.
- [97] H.J. Dewit, C.H.M. Witmer, and F.W.A. Dirne. Induced anisotropy of amorphous CoFeSiB and CoNbZr magnetic-materials. *IEEE Transactions on Magnetics*, 23(5) :2123–2127, 1987. Part 1.
- [98] Y. Shimada and H. Kojima. Sputtering of amorphous Co-Zr and Co-Hf films with soft magnetic properties. *Journal of Applied Physics*, 53(4) :3156–3160, 1982.
- [99] A. Hernado, J. Gonzalez, J.M. Blanco, M. Vazquez, J.M. Barandarian, G. Rivero, and E. Ascasibar. *Physical review B*, 46 :3401, 1992.
- [100] J. Gutierrez, A. Garcia-Arribas, J.S. Garitaonaindia, J.M. Barandarian, and P.T. squire. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 157-158 :543–544, 1996.
- [101] A. Materne. *Élaboration et caractérisation d’alliages amorphes ferromagnétiques doux, $Co_{1-x}Zr_x$ et $Co_{1-x}(Zr,Nb)_x$ pour l’application aux têtes intégrées de l’enregistrement magnétique*. PhD thesis, Université de Grenoble, 1984.
- [102] R. M. Idrus and P. J. Grundy. *Zeitschrift für Physik B*, 92, 1993.
- [103] H.P. Klein and E. Kneller. *Physical Review*, 144 :372, 1966.
- [104] S.D. Manham, A.S. Arrot, and B. Heinrich. *Journal of Applied Physics*, 52 :1941, 1981.
- [105] H. Katada, T. Shimatsu, I. Watanabe, H. Muraoka, Y. Sugita, and Y. Nakamura. *IEEE Transactions on Magnetics*, 36(5) :2905–2908, 2000.
- [106] H. Tomita, T. Sato, and T. Mizoguchi. Oblique-field annealing effect for in-plane magnetic-anisotropy of soft-magnetic Co-Nb-Zr thin-films. *IEEE Transactions on Magnetics*, 30(3) :1336–1339, 1994.

- [107] K.K. Choh, J.H. Judy, and J.M. Sivertsen. *IEEE Transactions on Magnetism*, 23(5) :2539–2541, 1987. Part 1.
- [108] L. Néel. *J. Phys. Rad.*, 15 :225–239, 1954.
- [109] J. C. Slonczewski. chapter Magnetic Annealing, page 205. Rado and Suhl, 1963.
- [110] B.W. Corb, R. C. O’Handley, J. Megusar, and N. J. Grant. *Phys. Rev. Lett.*, 51(15) :1386, 1983.
- [111] P. Kamp, A. Marty, B. Gilles, R. Hoffmann, S. Marchesini, M. Belakhovsky, C. Boeglin, H. Durr, S. S. Dhesi, and G. van der Laan. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 198-199 :628–631, 1999.
- [112] G. Suran, F. Machizaud, and M. Naili. *Physical Review B*, 47(22) :15007–15018, 1993.
- [113] K. Ounadjela. *Étude de l’anisotropie induite uniaxiale dans les couches minces amorphes ferromagnétiques douces $Co_{1-x}Ti_x$. Couplage d’échange avec une couche ferromagnétique dure $CoPtTi$* . PhD thesis, Université Paris VII, 1986.
- [114] S.M. Valvidares, J.I. Martin, L.M. Alvarez-Prado, D. Pain, O. Acher, G. Suran, and J.M. Alameda. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 242-245(Part 1) :169–172, 2002.
- [115] A.G. Dirks and H.J. Leamy. Columnar microstructure in vapor-deposited thin films. *Thin Solid Films*, 47 :219–233, 1977.
- [116] S. Keitoku, S. Negishi, I. Tsuchitori, and M. Goto. *IEEE Transactions on Magnetism*, 5(12) :1114–1120, 1990.
- [117] Y. Compère. Comparaison des propriétés de couches minces ferromagnétiques réalisées par dépôt statique ou au déroulé. *Rapport de stage IUT*, 2006.
- [118] E. Hervé. Élaboration de couches minces ferromagnétiques sur substrat polymère par pulvérisation cathodique. DRT - Génie des Matériaux, Université de Poitiers, 2001.
- [119] K. Ishiyama, A. Toyoda, K.I. Arai, and K. Okita. Measurement of anisotropy dispersion in soft-magnetic films with quantitative estimation. *IEEE Transactions on Magnetism*, 31(6) :3841–3843, 1995. Part 2.
- [120] J. Smit and H. G. Beljers. Ferromagnetic resonance absorption in $BaFe_{12}O_{19}$, a highly anisotropic crystal. *Philips Res. Rep.*, 10 :113–130, 1955.

- [121] M. Guyot, M. Rouabhi, R. Krishnan, M. Porte, H. Niedoba, and V. Cagan. Domain wall pinning in amorphous CoZrNb films. *Journal of Applied Physics*, 73(10) :5604–5606, 1993.
- [122] J. M. Barandarian, M. Vazquez, A. Hernando, J. Gonzalez, and G. Rivero. *IEEE Transactions on Magnetism*, 25(5) :3330, 1989.
- [123] C. Hernandez. Étude de la dispersion d’aimantation dans les couches minces magnétiques. *Rapport de stage IUT*, 2009.
- [124] W. F. Brown. *Micromagnetics*. Interscience Publishers, 1963.
- [125] A. Aharoni. *Introduction to the theory of ferromagnetism*. Oxford Science Publication, 1996.
- [126] R. Röhlsberger, H. Thomas, K. Schlage, E. Burkel, O. Leupold, and R. Rüffer. Imaging the magnetic spin structure of exchange-coupled thin films. *Physical Review Letters*, 89(23) :237201, 2002.
- [127] M. TH. Rekveldt. Study of ferromagnetic bulk domains by neutron depolarization in 3 dimensions. *Z. Phys.*, 259(5) :391–410, 1973.
- [128] H. Xi and R.M. White. Coupling between two ferromagnetic layers separated by an antiferromagnetic layer. *Physical Review B*, 62(6) :3933, 2000.
- [129] L. Joly F. Canet, C. Bellouard and S. Mangin. Magnetic behavior of exchange-coupled Fe₃₀Au₇₀/Fe₆₅Au₃₅ bilayers. *Physical Review B*, 69 :094402, 2004.
- [130] N. Vukadinovic, J. Ben Youssef, V. Castel, and M. Labrune. Magnetization dynamics in interlayer exchange-coupled in-plane/out-of-plane anisotropy bilayers. *Physical Review B*, 79 :184405, 2009.
- [131] N. Vukadinovic, O. Vacus, M. Labrune, O. Acher, and D. Pain. Magnetic excitations in a weak-stripe domain structure : a 2D dynamic micromagnetic approach. *Physical Review Letters*, 85(13) :237201, 2000.
- [132] E. du Trémolet de Lacheisserie. *Magnetostriction : Theory and applications of magnetoelasticity*. CRC Press Inc, 1993.
- [133] D. Beaujouan. Modélisation de la dispersion spatiale de l’aimantation. *Rapport de stage MII Recherche - Université de Tours*, 2009.
- [134] V. Dubuget, S. Dubourg, P. Thibaudeau, and F. Duverger. *IEEE Transactions on Magnetism*, Accepted, 2009.
- [135] C. Kittel. *Physical Review*, 73 :155, 1948.

- [136] L. M. Alvarez-Prado and J. M. Alameda. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 316 :e872–e875, 2007.
- [137] V. Dubuget, A-L. Adenot-Engelvin A. Thiaville, S. Dubourg, and F. Duverger. Domain and wall structures in soft magnetic bilayers with crossed anisotropies. *Journal of Applied Physics*, Submitted.
- [138] C. Kittel. *Phys. Stat. Sol.*, 34 :237, 1969.
- [139] J. C. Slonczewski. *Phys. Rev. Lett.*, 67 :3172, 1991.
- [140] M. Rühlig, R. Schäfer, A. Hubert, R. Mosler, J. A. Wolf, S. Demokritov, and P. Grünberg. *Phys. Stat. Sol. (a)*, 125 :635, 1991.
- [141] J. Unguris, R.J. Celotta, and D.T. Pierce. *Phys. Rev. Lett.*, 67 :140, 1991.
- [142] F Suits. Bilayer permalloy films grown in orthogonal applied. *IEEE Transactions on Magnetics*, 26(5) :2353–2355, Sep 1990.
- [143] H. Niedoba, L.J. Heyderman, and A. Hubert. *Journal of Applied Physics*, 73(10) :6362–6364, 1993.
- [144] R. Schäfer. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 148 :226–231, 1995.
- [145] F. Schoenstein, P. Aublanc, H. Pages, S. Queste, V. Barentin, A-L. Adenot, N. Malléjac, and O. Acher. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 292 :201, 2005.
- [146] O. Halpern and T. Holstein. On the passage of neutrons through ferromagnets. *Phys. Rev.*, 59 :960–981, 1941.
- [147] P. Thibaudeau, F. Ott, A. Thiaville, V. Dubuget, and F. Duverger. Probing magnetic domain wall profiles by neutron spin precession. *Europhysics Letters*, Submitted.
- [148] D.A. Thompson, L.A. Finzi, H. Chang, and P. Albert. *Journal of Applied Physics*, 37 :1274, 1966.
- [149] J.C. Peuzin and J. G. Gay. *Acte des journées d'études sur la caractérisation microonde des matériaux absorbants*, pages 75–78, 1991.
- [150] D. Pain, M. Ledieu, O. Acher, A-L. Adenot, and F. Duverger. *Journal of Applied Physics*, 85 :8151, 1999.
- [151] M. Ledieu, F. Schoenstein, J.H. Le Gallou, O. Valls, S. Queste, F. Duverger, and O. Acher. *Journal of Applied Physics*, 93(10) :7202–7204, 2003.

Résumé :

Au cours de ce manuscrit sont reportées l'élaboration et la caractérisation de matériaux ferromagnétiques doux : les microfils nanocristallisés gainés de verre de composition Finemet élaborés par le procédé de tirage Taylor-Ulitovsky et les couches minces amorphes de composition CoNb et CoZr déposées par pulvérisation cathodique assistée magnétron.

Une première partie du travail de thèse a été consacrée à l'étude de l'influence de l'état structural et de la composition sur les propriétés magnétiques, respectivement au travers des microfils nanocristallisés gainés de verre et des couches minces amorphes.

Une deuxième partie a été vouée à référencer les différentes sources de dispersion d'aimantation des couches minces magnétiques, élaborées au déroulé sur substrat polymère. Une méthode a été proposée afin de quantifier la distribution d'anisotropie en angle et en intensité dans l'épaisseur. Le comportement magnétique des telles couches a été modélisé en prenant en compte la distribution d'aimantation expérimentale dans une approximation de *n-macrospins* sans interaction d'échange. Un second volet a consisté à développer un modèle micromagnétique unidimensionnel prenant en compte l'énergie d'échange. Ce modèle a été appliqué avec succès sur une bicouche et une multicouche à anisotropies magnétiques croisées, élaborées spécifiquement à cet effet. L'étude exhaustive d'une bicouche à anisotropies croisées a été menée : aimantation statique et dynamique, structure en domaines magnétiques, aimantation dynamiquement couplée et caractérisation du profil d'aimantation dans l'épaisseur.

Mots clés : Matériau magnétique doux, Microfil nanocristallisé gainé de verre, Couche mince amorphe, Distribution d'anisotropie, Dispersion d'aimantation, Énergie d'échange.

Abstract :

The aim of this work is to product and characterize some soft ferromagnetic materials : nanocrystallized Finemet-based glass-coated microwires fabricated using a Taylor-Ulitovsky process and amorphous Co-based thin films deposited by magnetron sputtering.

In a first part, the influence of the structural order for the nanocrystallized glass-coated microwires and the influence of the composition for the thin magnetic films on the magnetic properties has been studied.

In a second part, the various origins of the magnetization dispersion of thin layers deposited continuously on a transported polymeric substrate has been listed. A method has been proposed to estimate both angular and intensity anisotropy distribution in depth. The magnetic susceptibility calculation taking into account the experimental magnetization dispersion is achieved in the framework of *n-macrospins* approximation without the exchange interaction. In addition, the static and dynamic magnetic behavior of both a bilayer and a multilayer with crossed magnetic anisotropies has been reproduced by a dedicated 1D micromagnetic model (with the exchange energy). In particular, a detailed study of such a bilayer has been investigated : static and dynamic magnetization, magnetic domain structure, coupled dynamically magnetization and characterization of the magnetization distribution in depth.

Keywords : Soft magnetic material, Nanocrystallized glass-coated microwire, Amorphous thin film, Anisotropy Distribution, Magnetization dispersion, Exchange energy.